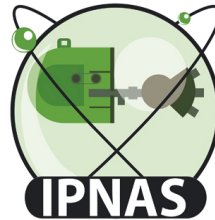


UNIVERSITE DE LIEGE

FACULTE DES SCIENCES



# Développement d'un dispositif d'analyses par faisceaux d'ions de haute énergie et applications en archéométrie



Thèse présentée par  
**Thomas Dupuis**  
en vue de l'obtention du titre de Docteur  
en Sciences Physiques

2012





# Développement d'un dispositif d'analyses par faisceaux d'ions de haute énergie et applications en archéométrie

## Jury de thèse

Dr. Lucile Beck	CEA, Paris
Prof. Aurélio Climent-Font	UAM, Madrid
Prof. Stéphane Lucas	FUNDP, Namur
Dr. John Martin	Université de Liège
Dr. François Mathis	Université de Liège

## Promoteur

Dr. David Strivay  
Centre Européen d'Archéométrie et Institut de Physique Nucléaire  
Atomique et de Spectroscopie  
Université de Liège

Thèse présentée par  
**Thomas Dupuis**  
en vue de l'obtention du titre de Docteur  
en Sciences Physiques

2012

*Il m'est agréable de remercier Monsieur David Strivay, pour son indéfectible support tant sur le plan scientifique que sur le plan humain.*

*J'exprime ici ma profonde gratitude envers les membres de mon Comité de Thèse, Madame L. Beck, Chef du laboratoire JANNUS (CEA), et Monsieur F. Mathis, chercheur FRNS-CEA. J'en profite également pour saluer la mémoire de Monsieur J. Salomon, ancien Ingénieur de Recherche du C2RMF, qui m'a accueilli temporairement au sein de l'équipe de l'accélérateur "AGLAE" et du Professeur H.P. Garnir.*

*Je remercie Messieurs G. Chêne et A. Marchal pour m'avoir transmis leur savoir et leur savoir-faire et pour les nombreuses discussions tantôt scientifique, tantôt philosophique, tout au long de l'avancement de ma thèse.*

*Je tiens également à remercier mes collègues F.-P. Hocquet et L. Samain, avec qui j'ai partagé quatre années au sein du même bureau, pour leur soutien scientifique et moral.*

*Je dois beaucoup à la compétence et au dévouement de mes collègues, M. Clar, A. Holsbeek, M. Philippe et S. Rakkaa dans le domaine de l'électro-mécanique.*

*Je me dois aussi de remercier toutes les personnes qui m'ont aidées dans l'élaboration et la réalisation de cette thèse, pour les échanges d'idées et leurs conseils avisés : L.Pichon, B. Moignard, T. Calligaro, J. Campbell, S. Merchel, C. Neelmeijer, G. Terwagne, A. Climentfont, H. E. Mahnke, H. Calvo del Castillo.*

*Je remercie aussi la "Politique Scientifique Fédérale - BELSPO", le "Centre Européen d'Archéométrie", l'"Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie", le "Fond National pour la Recherche Scientifique" et "Wallonie-Bruxelles International" pour le soutien financier qu'ils m'ont accordé.*

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>i</b>
<b>Introduction Générale</b>	<b>7</b>
<b>I Les Méthodes d’analyses par faisceaux d’ions</b>	<b>11</b>
<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>1 La méthode PIXE</b>	<b>17</b>
1.1 La méthode PIXE . . . . .	17
1.2 Principes physiques . . . . .	18
1.2.1 Phénomènes physiques particuliers . . . . .	21
1.3 Section efficace . . . . .	23
1.4 Pouvoir d’arrêt . . . . .	27
1.5 Atténuation des rayons X . . . . .	28
1.6 Détecteurs dédiés à la PIXE . . . . .	29
1.6.1 Efficacité des détecteurs . . . . .	29
1.7 Spectre typique . . . . .	30
1.7.1 Artefacts de détection . . . . .	30
1.7.2 Bruits de fond . . . . .	32
1.7.3 Limite de détection . . . . .	35
1.8 Exemple d’application . . . . .	36
<b>2 La méthode RBS</b>	<b>39</b>
2.1 La méthode RBS . . . . .	39
2.2 Section efficace . . . . .	43
2.3 Exemple d’application . . . . .	45

<b>3</b>	<b>La méthode PIGE</b>	<b>47</b>
3.1	La méthode PIGE . . . . .	47
3.2	Résonance . . . . .	48
3.3	Section efficace . . . . .	49
3.4	Réaction nucléaire . . . . .	49
3.5	Exemple d'application . . . . .	52
<b>4</b>	<b>La méthode IBIL</b>	<b>57</b>
4.1	La méthode IBIL . . . . .	57
4.2	Exemples d'application . . . . .	59
	<b>Conclusion</b>	<b>61</b>
 <b>II Facilités dédiées aux techniques IBA à l'Université de Liège</b>		<b>63</b>
	<b>Introduction</b>	<b>65</b>
<b>1</b>	<b>Le Cyclotron CGR-MeV 520</b>	<b>67</b>
1.1	Les lignes de transport du cyclotron CGR-MeV 520 de Liège .	69
1.2	Le transport du faisceau dans la ligne de transport direct - Voie 5 . . . . .	72
1.3	La zone de travail de la ligne de transport direct - Voie 5 . . .	72
1.3.1	L' ancien dispositif . . . . .	72
1.3.2	Le dispositif actuel . . . . .	77
1.3.3	Les limitations de la ligne de transport directe . . . .	81
1.4	Le transport du faisceau dans la ligne de transport analysé - Voie 8 . . . . .	82
1.4.1	Amélioration de la résolution en énergie du faisceau .	84
1.4.2	Système du vide . . . . .	85
1.5	La zone de travail de la ligne de transport analysé - Voie 8 . .	86
1.5.1	La chambre sous vide "Standard" . . . . .	86
1.5.2	La zone de travail extraite à l'air libre . . . . .	92
1.5.3	Modernisation du système d'acquisition électronique .	96
1.5.4	Le système "Time Of Flight" . . . . .	98
<b>2</b>	<b>Etudes et conceptions des déflecteurs</b>	<b>101</b>
2.1	Déflecteur en voie 5 . . . . .	103
2.2	Déflecteur en voie 8 . . . . .	104
2.3	Etude des trajectoires . . . . .	105

2.4	Etude du cas des particules $\alpha$ . . . . .	108
2.5	Applications préliminaires des déflecteurs . . . . .	109
2.5.1	Protons, déflecteur 7 cm, 0,57 T, $d=0,6$ cm et $d=1,2$ cm	111
2.5.2	Protons, déflecteur 4 cm, 0,85 T, $d=1$ cm et $d=3$ cm .	112
2.5.3	Alphas, déflecteur 4cm, 0,85 T, $d=0,8$ cm . . . . .	113
2.5.4	Interprétations des résultats . . . . .	114
<b>Conclusion</b>		<b>115</b>
 <b>III Calibration des géométries de détection associées aux méthodes IBA</b>		 <b>117</b>
<b>Introduction</b>		<b>119</b>
<b>1</b>	<b>Ionenstrahlzentrum - Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf</b>	<b>121</b>
1.1	Les équipements au sein du Ionenstrahlzentrum - HZDR . . .	121
1.2	La ligne-Kanal 5 dédiée aux IBA . . . . .	125
1.3	La zone de travail extraite dédiée aux IBA . . . . .	126
1.3.1	La zone de travail en 1996 . . . . .	126
1.3.2	La zone de travail actuelle . . . . .	130
<b>2</b>	<b>Caractérisation d'échantillons de référence en He-RBS</b>	<b>135</b>
2.1	Caractérisation du corpus d'échantillons de référence . . . . .	135
2.1.1	Echantillons 1 . . . . .	136
2.1.2	Echantillons 2 . . . . .	139
<b>3</b>	<b>Calibration de la zone de travail de la ligne - Kanal 5 pour les méthodes PIXE/PIGE avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV</b>	<b>141</b>
3.1	Calibration de l'énergie du nouvel accélérateur . . . . .	142
3.1.1	Choix de l'énergie d'analyse . . . . .	143
3.2	Calibration pour des analyses PIXE quantitatives . . . . .	145
3.2.1	PIXE 1 : Matrice . . . . .	146
3.2.2	PIXE 2 : Trace . . . . .	155
3.3	Calibration pour des analyses PIGE quantitatives . . . . .	166
3.3.1	Stratégie . . . . .	166
3.3.2	Calibration utilisée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV . . . . .	170

3.3.3	Calibration calculée avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV . . . . .	174
3.3.4	Comparaison des calibrations de 2008 et 2011 . . . . .	180
<b>4</b>	<b>Calibration de la zone de travail de la ligne - Kanal 5 pour la méthode RBS avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV</b>	<b>183</b>
4.1	Calibration effectuée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV . . . . .	184
4.1.1	Calibration RBS extrait . . . . .	184
4.2	Expériences avec l'accélérateur de 6 MV . . . . .	188
4.2.1	Vérification de l'énergie incidente de 4 MeV proton . . . . .	188
4.2.2	Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 04.11.11 . . . . .	190
4.2.3	Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 14.11.11 . . . . .	201
	<b>Conclusion</b>	<b>203</b>
<b>IV</b>	<b>Etudes et comparaisons des différents couples énergie/particule pour la méthode PIXE</b>	<b>205</b>
	<b>Introduction</b>	<b>207</b>
<b>1</b>	<b>L'Accélérateur Grand Louvre pour des Analyses Élémentaires</b>	<b>209</b>
1.1	L'accélérateur AGLAE . . . . .	209
1.1.1	La chambre sous vide . . . . .	211
1.1.2	La géométrie de détection . . . . .	213
1.2	Analyses de cibles minces . . . . .	217
1.2.1	Interprétations . . . . .	232
1.3	Analyses de cibles épaisses . . . . .	235
1.3.1	Interprétations . . . . .	245
1.4	Conclusion . . . . .	248
<b>2</b>	<b>La capacité analytique du cyclotron de Liège</b>	<b>249</b>
2.1	Analyses de cibles minces . . . . .	249
2.2	Analyses de cibles épaisses . . . . .	260
2.2.1	Cibles épaisses élémentaires . . . . .	260
2.2.2	Cibles minces multi-élémentaires de référence. . . . .	266
2.3	Conclusion . . . . .	277

<b>Conclusion</b>	<b>279</b>
<b>V Sections efficaces de production de rayons X</b>	<b>281</b>
<b>Introduction</b>	<b>283</b>
<b>1 Section efficace d'ionisation</b>	<b>285</b>
1.1 Modèles théoriques . . . . .	285
1.1.1 PWBA . . . . .	285
1.1.2 ECPSSR . . . . .	291
1.1.3 Correction de liaison . . . . .	292
1.1.4 Correction de la déviation coulombienne . . . . .	293
1.1.5 Correction relativiste . . . . .	294
1.1.6 Correction de perte d'énergie . . . . .	294
1.2 Conclusion . . . . .	294
<b>2 Mesures de sections efficaces de production de rayons X</b>	<b>295</b>
2.1 Sections efficaces de production de rayons X . . . . .	296
2.2 Dispositif expérimental . . . . .	297
2.2.1 Expériences préliminaires de la définition de la géométrie	299
2.2.2 Calibration de l'énergie des faisceaux de particules $\alpha$ .	301
2.2.3 Reproductibilité de la mesure de la dose. . . . .	303
2.2.4 Précision de la mesure de la dose . . . . .	305
2.3 Résultats expérimentaux . . . . .	306
2.3.1 Stratégie . . . . .	307
2.3.2 L'aluminium . . . . .	310
2.3.3 Le silicium . . . . .	313
2.3.4 Le fer . . . . .	319
2.3.5 Le cuivre . . . . .	323
2.3.6 L'or . . . . .	328
2.3.7 Le plomb . . . . .	335
<b>Conclusion</b>	<b>343</b>
<b>Conclusion Générale</b>	<b>345</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>347</b>
<b>Table des figures</b>	<b>355</b>





# Introduction Générale

Ma thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet global de mise au point de techniques permettant les analyses nécessaires dans les différentes thématiques mises en pratique au Centre Européen d'Archéométrie :  
Matière picturale, bois et pierre et arts du feu.

Mon choix s'est porté sur l'utilisation des faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie-haute résolution pour la caractérisation élémentaire et quantitative de matériaux par les méthodes d'analyses de faisceaux d'ions.

Cette orientation, dans la continuité de mon travail de mémoire, a été choisie pour différentes raisons :

- la présence d'un matériel spécifique au laboratoire de Liège (cyclotron) ;
- la possibilité d'une utilisation simultanée des trois méthodes complémentaires par faisceaux d'ions (Particle Induced X-ray Emission / Particle Induced Gamma-ray Emission / Rutherford Backscattering Spectroscopy) pour permettre un gain de temps d'analyse (protection des objets).

Le choix des faisceaux de particules  $\alpha$  exigeant une augmentation de l'énergie des particules incidentes utilisées pour des analyses en profondeur des échantillons par la méthode RBS, il fallait adapté la méthode PIXE aux hautes énergies (faisabilité, existence d'un intérêt supplémentaire, précision et fiabilité des résultats obtenus).

Mon travail de thèse présente donc successivement :

- dans la première partie :
  - les différentes méthodes d'analyse par faisceaux d'ions employées au laboratoire de Liège, leurs limites, leurs avantages et un exemple d'application pour chacune d'elles.
- dans la deuxième partie :
  - le matériel disponible, et les développements réalisés (dans le cadre du projet global) pour la mise en oeuvre des méthodes par faisceaux d'ions au laboratoire de Liège :
    - la ligne de transport direct.
    - la ligne de transport analysé.
    - les zones de travail associées.
    - la chambre de mesure des sections efficaces de production de rayons X.
- dans la troisième partie :
  - le travail réalisé en collaboration entre l'IPNAS et le HZDR (Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf) afin de mettre au point des stratégies de calibration des détecteurs associés aux méthodes par faisceaux d'ions (PIXE-PIGE-RBS) en faisceaux extraits.
- dans la quatrième partie :
  - l'intérêt de l'utilisation de faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie pour les analyses de cibles minces ou épaisses dans le cadre de la méthode PIXE.
  - la comparaison des résultats obtenus par cette méthode sur des échantillons similaires :

- d’une part à “basse énergie” dans le cadre d’une collaboration avec le C2RMF de Paris.
- d’autre part à “haute énergie” au sein de l’IPNAS.
- dans la cinquième partie :
  - les modèles théoriques de sections efficaces d’ionisation et la méthode mise au point pour la mesure des sections efficaces de production de rayons X avec des particules  $\alpha$  de haute énergie.
  - les résultats obtenus sur des cibles minces élémentaires et leurs discussions par rapport aux résultats théoriques et de référence.

Une conclusion générale évaluera l’intérêt des techniques développées et introduira des perspectives pour le futur.



Première partie

Les Méthodes d'analyses par  
faisceaux d'ions



# Introduction

Les méthodes d'analyses par faisceaux d'ions, désignées fréquemment par l'abréviation IBA ("Ion Beam Analysis"), constituent un ensemble de méthodes dérivées de la physique nucléaire. Elles ont vu leurs fondements apparaître au début du vingtième siècle [1][2].

La théorie de l'ion de M. Faraday, qui sera définitivement démontrée en 1884 par les travaux de S.A. Arrhenius lors de sa thèse de doctorat, date de 1830 [3]. Cependant, la découverte et la mise en évidence de l'existence du noyau atomique en 1911 par E. Rutherford peut être considérées comme le prémisses de la première expérience de rétrodiffusion élastique [4].

L'envoi de particules  $\alpha$  émises par une source radioactive fut orienté en direction d'une fine couche d'or. L'utilisation d'un écran scintillateur, enrichi en sulfure de zinc, dans la chambre sous vide a mis en exergue la déviation jusqu'aux grands angles (supérieurs à  $90^\circ$ ) des particules  $\alpha$ .

L'emploi, dans les années 30, des accélérateurs de type électrostatique originellement prévus pour la physique nucléaire, va permettre en 1957 les premières expériences de rétrodiffusion pour l'étude des matériaux par S. Rubin *et al.* [5].

Parallèlement, l'émission des rayons X, suite à l'interaction avec des particules prouvée par Chadwick en 1912, est examinée à des fins analytiques [6]. L'utilisation des accélérateurs linéaires permet alors de fournir des intensités de rayons X suffisantes pour être détectées. Une grande étape dans la spectrométrie de rayons X fut faite en 1950 par Castaing à l'université de Paris. Il montra que les rayons X émis par l'échantillon pouvaient être exploités pour l'analyse multi-élémentaire [7].

Finalement, c'est en 1970, suite à l'amélioration de l'efficacité et de la résolution des détecteurs, que Johansson réalise ce que l'on peut considérer comme la première expérience PIXE, grâce à un faisceau de protons de 2 MeV et un détecteur Si(Li) de 150 eV de résolution à 5,9 keV [8].

Par la suite, de nombreux accélérateurs ont été implantés de par le monde

pour tirer profit de ces méthodes analytiques. A côté de ces laboratoires impliqués dans l'étude des matériaux, quelques uns se sont spécialisés dans l'étude des objets du patrimoine culturel, comme le C2RMF qui a installé son accélérateur tandem "AGLAE" en 1987 au sein du musée du Louvre.

En 1972, l'université de Liège a implanté son propre cyclotron isochrone à énergie variable CGR 520 MeV de type AVF (Azimutally Varying Field) dont la mission essentielle était la production de radionucléides de courtes périodes à usage biomédical [9]. Suite à l'achat d'un nouvel accélérateur plus simple d'utilisation et plus moderne dans les années 1990, l'ancien cyclotron a été récupéré par l'Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie (IPNAS) et par ce qui deviendra en 2003 le Centre Européen d'Archéométrie. L'accélérateur vit depuis une deuxième vie dédiée principalement à l'étude des oeuvres d'art par les méthodes IBA.

Les méthodes sont donc basées sur les interactions de nature atomique et nucléaire de particules chargées énergétiques (de l'ordre du MeV) avec les électrons et les noyaux des atomes constitutifs d'un échantillon-cible.

En plus d'un ralentissement et d'une déviation de la particule chargée incidente, une émission secondaire de rayonnement X,  $\gamma$  ou corpusculaire peut également se produire. La nature de ce rayonnement secondaire détecté définit le type d'analyse. Le tableau 1 reprend les différentes méthodes IBA qui sont le plus couramment utilisées, ainsi que leurs types d'interactions et la nature du rayonnement secondaire.

Méthode	Eléments	Particules incidentes	Interaction	Détection	Profondeurs sondées
PIXE	$Z \geq 11$	p, $\alpha$	Ionisation	Rayons X	0,1- qq $\mu\text{m}$
RBS	$Z \geq 5$	$\alpha$ , p	Diffusion nucléaire	$\alpha$ , p	qq $\mu\text{m}$
PIGE	$Z \leq 15$	p	Réaction nucléaire	$\gamma$	qq $\mu\text{m}$
IBIL		p	Absorption d'énergie	UV-Visible	qq $\mu\text{m}$

TABLE 1 – Méthodes d'analyses par faisceaux d'ions courantes au "Centre Européen d'Archéométrie"

Ces méthodes développées depuis les années soixante (et l'apparition des petits accélérateurs de type "van de Graaff") dans les domaines de la science des matériaux sont de plus en plus utilisées dans le domaine de l'art et de l'archéologie [10][11][12].

Cet intérêt porté aux techniques IBA en Archéométrie peut facilement se comprendre. En effet, ces techniques permettent lors d'une analyse spectroscopique non-destructive et non-invasive d'obtenir diverses informations



sur l'échantillon-cible :

- La composition élémentaire ;
- La concentration des différents composants ;
- L'épaisseur, l'ordre et la profondeur des couches.

Cette partie a pour objectif de familiariser le lecteur aux différentes techniques IBA qui ont été employées au cours de la thèse. De surcroît, la méthode PIXE fera l'objet d'une attention plus particulière.



# Chapitre 1

## La méthode PIXE

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>La méthode PIXE . . . . .</b>	<b>17</b>
<b>1.2</b>	<b>Principes physiques . . . . .</b>	<b>18</b>
1.2.1	Phénomènes physiques particuliers . . . . .	21
<b>1.3</b>	<b>Section efficace . . . . .</b>	<b>23</b>
<b>1.4</b>	<b>Pouvoir d'arrêt . . . . .</b>	<b>27</b>
<b>1.5</b>	<b>Atténuation des rayons X . . . . .</b>	<b>28</b>
<b>1.6</b>	<b>Détecteurs dédiés à la PIXE . . . . .</b>	<b>29</b>
1.6.1	Efficacité des détecteurs . . . . .	29
<b>1.7</b>	<b>Spectre typique . . . . .</b>	<b>30</b>
1.7.1	Artefacts de détection . . . . .	30
1.7.2	Bruits de fond . . . . .	32
1.7.3	Limite de détection . . . . .	35
<b>1.8</b>	<b>Exemple d'application . . . . .</b>	<b>36</b>

---

### 1.1 La méthode PIXE

La méthode PIXE, “Particule Induced X-ray Emission”, est basée sur l’ionisation des couches internes d’un atome de l’échantillon lors de l’interaction avec un faisceau de particules chargées (proton ou particule  $\alpha$ ) et l’émission secondaire d’un rayonnement X caractéristique de l’atome ainsi ionisé [1].

Ce phénomène a été reporté par Chadwick en 1912 [6], lors de bombardements de particules  $\alpha$  sur des cibles variées. Mais c’est en 1970 que Johansson *et al.* [8], grâce à l’amélioration des détecteurs semi-conducteurs,

utilisèrent pour la première fois la méthode PIXE. Aujourd'hui, la technique PIXE est couramment utilisée en Archéométrie pour deux raisons :

- Le caractère non-destructif de la méthode permet l'analyse d'objets uniques et très précieux issus des collections des musées, C'est l'utilisation de faisceaux de faible intensité lors des analyses, grâce à des sections efficaces d'ionisation importantes, qui donne ce caractère à la technique PIXE [13].
- La technique peut être utilisée dans un dispositif externe sous atmosphère. Cette caractéristique permet l'analyse d'objets de grandes tailles et/ou fragiles sans obligation de prélever d'échantillon de l'objet. Une analyse sous vide de ces différents objets étant forcément impensable [14].

## 1.2 Principes physiques

Lorsqu'une particule chargée énergétique (de l'ordre du MeV) interagit avec un atome constitutif de l'échantillon-cible, il existe une certaine probabilité qu'un électron des couches internes (K, L ou M) soit éjecté (figure 1.1).

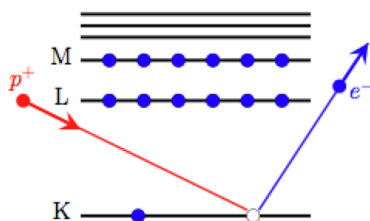


FIGURE 1.1 – Schéma d'ionisation.

La lacune ainsi formée va pouvoir alors être comblée par un électron des couches externes lors du réarrangement électronique. Et celui-ci va alors évacuer son excédent d'énergie en émettant, dans certain cas, un photon X d'énergie caractéristique (figure 1.2). L'énergie du photon ainsi émis est donnée par la loi de Moseley :

$$E = C(Z - s)^2 \quad (1.1)$$

où  $Z$  est le numéro atomique,  $C$  une constante différente pour chaque série spectrale et  $s$  une constante proche de 1.

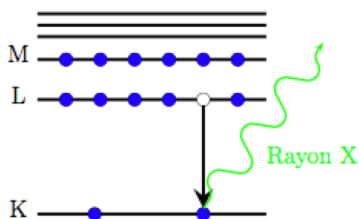


FIGURE 1.2 – Schéma de production de rayon X.

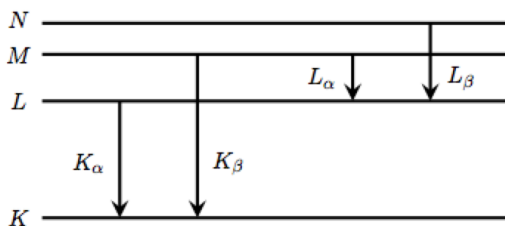


FIGURE 1.3 – Diagramme de niveaux.

La figure 1.3 montre un diagramme de niveaux avec les transitions permises par les règles de sélection. Les transitions vers le niveau  $K$  sont dénotées raies  $K$ . Si l'électron vient du niveau  $L$ , on note la raie  $K_\alpha$  et s'il vient du niveau  $M$ ,  $K_\beta$ . Dû à la structure fine, les raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$  sont des doublets. Les transitions vers les niveaux  $L$  sont notées raies  $L$ . Ces dernières ont de nombreuses composantes, surtout pour les éléments lourds. Un spectre X complet est donc généralement assez compliqué. Toutefois, certaines composantes ont à peu près la même énergie (e.g, les raies  $K_{\alpha_1}$  et  $K_{\alpha_2}$ ) et apparaissent donc comme une seule raie à cause de la résolution intrinsèque du détecteur. De plus, certaines transitions ont une faible probabilité. En résumé, lors d'une analyse PIXE, les éléments légers et moyens

sont détectés seulement par les deux raies  $K_\alpha$  et  $K_\beta$ . L'analyse des éléments d'un échantillon se fera donc préférentiellement soit par ses raies  $K$ , soit par ses raies  $L$ , suivant son numéro atomique. Dans la pratique, les éléments dans l'intervalle  $20 < Z < 50$  seront analysés via leurs raies  $K$  tandis que les éléments de  $Z > 50$  le seront par leurs raies  $L$ . Cette séparation est due à la faible efficacité des détecteurs et aux faibles énergies des raies  $L$  pour les éléments de numéro atomique inférieur à 50. En pratique, la méthode PIXE permet d'analyser les éléments du tableau périodique allant du sodium à l'uranium.

La table 1.1 reprend les principales raies X et leurs intensités relatives par rapport à la raie majeure de chaque sous-couche.

Séries	IUPAC	Siegbahn	Intensité relative
Raies K	$K - L_3$	$K_{\alpha 1}$	100
	$K - L_2$	$K_{\alpha 2}$	$\sim 50$
	$K - M_3$	$K_{\beta 1}$	$\sim 17$
	$K - M_2$	$K_{\beta 3}$	$\sim 8$
Raies L3	$L_3 - M_5$	$L_{\alpha 1}$	100
	$L_3 - M_4$	$L_{\alpha 2}$	$\sim 10$
	$L_3 - N_{5,4}$	$L_{\beta 2,15}$	$\sim 25$
	$L_3 - M_1$	$L_l$	$\sim 5$
	$M_3 - N_1$	$L_{\beta 6}$	$\sim 1$
Raies L2	$L_2 - M_4$	$L_{\beta 1}$	100
	$L_2 - N_4$	$L_{\gamma 1}$	$\sim 20$
	$L_2 - M_1$	$L_\eta$	$\sim 3$
	$L_2 - O_1$	$L_{\gamma 6}$	$\sim 3$
Raies L1	$L_1 - M_3$	$L_{\beta 3}$	100
	$L_1 - M_2$	$L_{\beta 4}$	$\sim 70$
	$L_1 - N_3$	$L_{\gamma 3}$	$\sim 30$
	$L_1 - N_2$	$L_{\gamma 2}$	$\sim 30$
Raies M	$M_5 - N_7$	$M_{\alpha 1}$	
	$M_5 - N_6$	$M_{\alpha 2}$	
	$M_5 - N_5$	$M_\beta$	

TABLE 1.1 – Notations (IUPAC et Siegbahn) des principales raies X et leurs intensités relatives par rapport à la raie majeure pour chaque sous-couche.

Il est important de remarquer que l'atome peut également se désexciter par l'intermédiaire d'une transition non radiative. En effet, l'électron qui vient combler la lacune de la couche interne peut également évacuer son excédent d'énergie en le transmettant à un autre électron d'une couche supérieure. Cet autre électron va alors pouvoir s'échapper de sa couche grâce

au gain d'énergie. Ce phénomène physique est appelé l'effet Auger (figure 1.4).

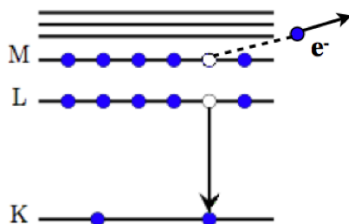


FIGURE 1.4 – Schéma d'émission d'électron Auger.

Un troisième processus beaucoup plus rare consiste en l'excitation nucléaire par transition électronique. L'énergie libérée par la transition électronique est cédée au noyau qui subit ainsi une excitation.

Il y a donc une compétition entre la production de rayons X et d'électrons Auger, qui a tendance à voir l'importance des rayons X augmenter quand le numéro atomique  $Z$  augmente. Une conséquence importante de l'effet Auger est la réduction du nombre de rayons X produits par rapport à celui attendu. La probabilité qu'une lacune soit remplie via une transition radiative est appelée "rendement de fluorescence".

### 1.2.1 Phénomènes physiques particuliers

- Ionisation multiple.

Il se peut que plusieurs vacances soient présentes dans les couches internes. Ce phénomène s'appelle l'ionisation multiple. Il a pour effet d'augmenter, très faiblement, l'énergie du rayonnement X caractéristique à cause de la diminution de l'effet d'écran. Ces raies sont appelées les raies satellites. Il est également possible que deux vacances se trouvent dans la couche  $K$ . L'intensité des raies hypersatellites alors émises est cependant beaucoup plus faible que celle des raies diagrammes.

- Etat solide et liaison chimique.

Les atomes sont liés à une structure cristalline dans les solides et ne peuvent donc pas être considérés comme libre. La structure de bande des couches externes affecte cependant peu les couches profondes des atomes ( $K$ ,  $L$ ,  $M$ ). Si l'atome fait partie d'une molécule, les électrons de valence participent alors à la liaison chimique. La modification de l'effet d'écran déplace alors les niveaux d'énergie des électrons des couches internes. Même si ce déplacement chimique se fait ressentir jusque dans les couches profondes, la modification en énergie est négligeable dans le cas des raies  $K$ .

- Conversion interne.

Un noyau excité peut passer d'un niveau d'énergie à un autre en émettant un rayonnement électromagnétique  $\gamma$ . L'énergie libérée par le noyau lors de la transition peut ne pas être cédée à un photon mais à un électron des couches atomiques. Ce phénomène de conversion interne peut être perçu comme une interaction électromagnétique due à l'échange d'un photon virtuel entre le noyau et l'électron. Une vacance dans la couche atomique est ainsi obtenue lors de l'éjection de l'électron.

- Ionisation consécutive aux réactions nucléaires - Activation.

Lors d'une réaction nucléaire, une ionisation des couches atomiques profondes peut se produire, soit au moment même de la réaction, soit lors de la désintégration du noyau résiduel et instable issu de cette réaction.

L'ionisation qui se produit lors de la réaction nucléaire s'explique par le processus de conversion interne lors de la désexcitation du noyau résiduel. Les rayons X émis sont donc caractéristiques du produit de réaction nucléaire.

Quant à l'ionisation liée à la désintégration du noyau résiduel, elle peut être issue de plusieurs mécanismes :

- Capture électronique.

Le noyau mère ( $Z$ ) peut capturer un électron de la couche  $K$  ou  $L$ ,



ce qui induit une ionisation interne. Le noyau fille ( $Z - 1$ ) est ainsi formé. La vacance peut alors être comblée par les phénomènes de base de la méthode que sont la production d'un rayon X ou l'émission d'un électron Auger ; tous les deux caractéristiques de l'élément fille. La probabilité d'occurrence de ce phénomène peut être grande.

- Emission  $\alpha$  ou  $\beta$ .

La désintégration du noyau par l'émission de particules  $\alpha$  ou  $\beta$  peut être suivie de l'ionisation des couches atomiques selon trois phénomènes : la modification de la charge nucléaire, le recul du noyau suite à l'émission de la particule ou l'interaction coulombienne entre la particule chargée émise et un électron des couches atomiques.

Les deux premiers phénomènes sont appelés “effet de secousse” (shake up) ou “d'ébranlement” (shake down) suivant que l'électron éjecté est promu vers un état lié ou vers le continuum.

Les rayons X caractéristiques des produits de réactions nucléaires sont émis par des atomes en mouvement. En effet, l'impulsion de la particule incidente est transférée au noyau composé. Le noyau formé est mis en mouvement dans le même sens que la particule incidente. L'effet Doppler doit donc être considéré d'un point de vue théorique. Dans la pratique, la variation d'énergie est négligeable.

- Effets nucléaires.

Les effets isotopiques (liés au changement de la distribution de la charge nucléaire lors de l'addition ou du retrait du neutron au noyau initial) et hyperfins (liés à la levée de dégénérescence due à l'interaction entre le moment magnétique d'un électron et le spin du noyau) ne modifient que très peu l'énergie des rayons X caractéristiques des couches les plus profondes.

### 1.3 Section efficace

Les particules incidentes chargées et accélérées ionisent la matière, mais toutes les particules ne génèrent pas cet effet. Il est donc utile de connaître la section efficace d'ionisation pour un type de particules utilisées afin d'avoir

des analyses quantitatives :

$$\sigma_I(E_0) = Z^2 \sigma_i^P\left(\frac{E_0}{A}\right) \quad (1.2)$$

où  $\sigma_I(E_0)$  est la section efficace d'ionisation d'une particule incidente d'énergie  $E_0$ ,  $Z$  le numéro atomique de la particule incidente et  $\sigma_i^P(\frac{E_0}{A})$  la section efficace d'ionisation d'un proton d'énergie  $\frac{E_0}{A}$ . La connaissance de ce paramètre permet de déterminer le faisceau à employer (type de particules, énergie, intensité,...). Ceci montre que, d'un point de vue expérimental, il est toujours utile de connaître la composition approximative de l'objet à analyser afin de choisir le faisceau en conséquence.

La section efficace de production des rayons X est directement liée à la section efficace d'ionisation,  $\sigma_I$ , par l'intermédiaire du facteur de fluorescence,  $\omega$ .

$$\sigma_X = \sigma_I \omega \quad (1.3)$$

$$\omega_S = \sum_{i=1}^k N_{Si} \omega_{Si} = \sum_i \frac{\sigma_{Si}^I}{\sum_i \sigma_{Si}^I} \frac{\sigma_{Si}^X}{\sigma_{Si}^I} \quad (1.4)$$

$$N_{Si} = \frac{\sigma_{Si}^I}{\sum_i \sigma_{Si}^I} \quad (1.5)$$

$$\omega_{Si} = \frac{\sigma_{Si}^X}{\sigma_{Si}^I} \quad (1.6)$$

$$\sum_i N_{Si} = 1 \quad (1.7)$$

$$\omega_K = \frac{\sigma_K^X}{\sigma_K^I} \quad (1.8)$$

$$\sigma_K^X = \sigma_{K\alpha}^X + \sigma_{K\beta}^X \quad (1.9)$$

$\omega_S$  est le rendement de la couche  $S$  ( $S = K, L, M, \dots$ ),  $\omega_{Si}$  est le rendement de la sous-couche  $i$  de la couche  $S$  ( $S = K, L, M, \dots$ ),  $N_{Si}$  est la section efficace relative d'ionisation. De plus, d'autres transitions dites de Coster-Kronig peuvent également se produire. Ces transitions sont de types non radiatives et apparaissent entre les sous-couches d'une couche ayant le même numéro quantique principal. Elles ont pour effet de modifier la distribution des sous-couches ionisées.

$$\omega_S = \sum_{i=1}^k V_{Si} \omega_{Si} \quad (1.10)$$

$$\sum_i V_{Si} > 1 \quad (1.11)$$

$$V_{S1} = N_{S1} \quad (1.12)$$

$$V_{S2} = N_{S2} + f_{12}^S N_{S1} \quad (1.13)$$

$$V_{S3} = N_{S3} + f_{23}^S N_{S2} + (f_{13}^S + f_{12}^S f_{23}^S) N_{S1} \dots \quad (1.14)$$

où  $V_{Si}$  sont les sections efficaces relatives d'ionisation de la sous-souche  $i$  de la couche  $s$  et  $f_{ij}^S$  est la probabilité de transition Coster-Kronig pour déplacer l'ionisation de la sous-couche  $i$  à la sous-couche  $j$ .

Comme le montre les tableaux de la figure 1.5, les rendements de fluorescence et les probabilités de transitions de Coster-Kronig ne sont pas connus avec beaucoup de précision. Les rendements de fluorescence sont cependant mieux connus dans le cas des couches  $K$  que dans le cas des couches  $L$  [15][16].

Le rendement de fluorescence dépend fortement du numéro atomique de l'élément cible, il est proche de 0 pour les  $Z$  inférieurs à 10 et tend vers 1 pour les  $Z$  proches de 100.

Table 3. Fluorescence and Coster-Kronig Yields

El	$\omega_K$	$\omega_{L_1}$	$\omega_{L_2}$	$\omega_{L_3}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$f'_{13}$	$f_{23}$
1 H	0.00002							
2 He	0.0001							
3 Li	0.0003							
4 Be	0.0007							
5 B	0.0014							
6 C	0.0026							
7 N	0.0043							
8 O	0.0069							
9 F	0.010							
10 Ne	0.015							
11 Na	0.021							
12 Mg	0.029	0.000029	0.0012	0.0012	0.32	0.64	0.000020	
13 Al	0.039	0.000026	0.00075	0.00075	0.32	0.64	0.000016	
14 Si	0.050	0.000030	0.00037	0.00038	0.32	0.64	0.000014	
15 P	0.064	0.000039	0.00031	0.00031	0.32	0.63	0.000012	
16 S	0.080	0.000074	0.00026	0.00026	0.32	0.62	0.000014	
17 Cl	0.099	0.00012	0.00024	0.00024	0.32	0.62	0.000014	
18 Ar	0.120	0.00018	0.00022	0.00022	0.31	0.62	0.000013	
19 K	0.143	0.00024	0.00027	0.00027	0.31	0.62	0.000012	
20 Ca	0.169	0.00031	0.00033	0.00033	0.31	0.61	0.000014	
21 Sc	0.196	0.00039	0.00084	0.00084	0.31	0.60	0.000014	
22 Ti	0.226	0.00047	0.0015	0.0015	0.31	0.59	0.000015	
23 V	0.256	0.00058	0.0026	0.0026	0.31	0.58	0.000016	
24 Cr	0.288	0.00071	0.0037	0.0037	0.31	0.57	0.000018	
25 Mn	0.321	0.00084	0.0050	0.0050	0.30	0.58	0.000019	
26 Fe	0.355	0.0010	0.0063	0.0063	0.30	0.57	0.000021	
27 Co	0.388	0.0012	0.0077	0.0077	0.30	0.56	0.000023	
28 Ni	0.421	0.0014	0.0086	0.0093	0.30	0.55	0.000024	0.028
29 Cu	0.454	0.0016	0.0100	0.011	0.30	0.54	0.000026	0.028
30 Zn	0.486	0.0018	0.011	0.012	0.29	0.54	0.000028	0.026
31 Ga	0.517	0.0021	0.012	0.013	0.29	0.53	0.000030	0.032
32 Ge	0.546	0.0024	0.013	0.015	0.28	0.53	0.000032	0.050
33 As	0.575	0.0028	0.014	0.016	0.28	0.53	0.000034	0.063
34 Se	0.602	0.0032	0.016	0.018	0.28	0.52	0.000036	0.076
35 Br	0.628	0.0036	0.018	0.020	0.28	0.52	0.000038	0.088
36 Kr	0.652	0.0041	0.020	0.022	0.27	0.52	0.000041	0.100
37 Rb	0.674	0.0046	0.022	0.024	0.27	0.52	0.000044	0.109
38 Sr	0.696	0.0051	0.024	0.026	0.27	0.52	0.000047	0.117
39 Y	0.716	0.0059	0.026	0.028	0.26	0.52	0.000052	0.126
40 Zr	0.734	0.0068	0.028	0.031	0.26	0.52	0.000058	0.132
41 Nb	0.751	0.0094	0.031	0.034	0.10	0.61	0.000078	0.137
42 Mo	0.767	0.0100	0.034	0.037	0.10	0.61	0.000081	0.141
43 Tc	0.782	0.011	0.037	0.040	0.10	0.61	0.000088	0.144
44 Ru	0.796	0.012	0.040	0.043	0.10	0.61	0.000096	0.148
45 Rh	0.807	0.013	0.043	0.046	0.10	0.60	0.000100	0.150
46 Pd	0.820	0.014	0.047	0.049	0.10	0.60	0.00011	0.151
47 Ag	0.831	0.016	0.051	0.052	0.10	0.59	0.00012	0.153
48 Cd	0.842	0.018	0.056	0.056	0.10	0.59	0.00014	0.155
49 In	0.851	0.020	0.061	0.060	0.10	0.59	0.00016	0.157
50 Sn	0.860	0.037	0.065	0.064	0.17	0.27	0.000030	0.157
51 Sb	0.868	0.039	0.069	0.069	0.17	0.28	0.000032	0.156
52 Te	0.875	0.041	0.074	0.074	0.18	0.28	0.000034	0.155
53 I	0.882	0.044	0.079	0.079	0.18	0.28	0.000037	0.154
54 Xe	0.888	0.046	0.083	0.085	0.19	0.28	0.000040	0.154
55 Cs	0.894	0.049	0.090	0.091	0.19	0.28	0.000043	0.154
56 Ba	0.900	0.052	0.096	0.097	0.19	0.28	0.000047	0.153
57 La	0.905	0.055	0.103	0.104	0.19	0.29	0.000051	0.153
58 Ce	0.910	0.058	0.110	0.111	0.19	0.29	0.000055	0.153
59 Pr	0.914	0.061	0.117	0.118	0.19	0.29	0.000060	0.153
60 Nd	0.918	0.064	0.124	0.125	0.19	0.30	0.000066	0.152
61 Pm	0.922	0.066	0.132	0.132	0.19	0.30	0.000072	0.151
62 Sm	0.926	0.071	0.140	0.139	0.19	0.30	0.000079	0.150
63 Eu	0.929	0.075	0.149	0.147	0.19	0.30	0.000087	0.149
64 Gd	0.932	0.079	0.158	0.155	0.19	0.30	0.000096	0.147
65 Tb	0.935	0.083	0.167	0.164	0.19	0.30	0.00011	0.145
66 Dy	0.938	0.089	0.178	0.174	0.19	0.30	0.00012	0.143
67 Ho	0.940	0.094	0.189	0.182	0.19	0.30	0.00013	0.142
68 Er	0.942	0.100	0.200	0.192	0.19	0.30	0.00014	0.140
69 Tm	0.945	0.106	0.211	0.201	0.19	0.29	0.00016	0.139
70 Yb	0.947	0.112	0.222	0.210	0.19	0.29	0.00018	0.138

El	$\omega_K$	$\omega_{L_1}$	$\omega_{L_2}$	$\omega_{L_3}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$f'_{13}$	$f_{23}$
71 Lu	0.949	0.120	0.234	0.220	0.19	0.28	0.00020	0.136
72 Hf	0.950	0.128	0.246	0.231	0.18	0.28	0.00023	0.135
73 Ta	0.952	0.137	0.258	0.243	0.18	0.28	0.00026	0.134
74 W	0.954	0.147	0.270	0.255	0.17	0.28	0.00028	0.133
75 Re	0.955	0.144	0.283	0.268	0.16	0.33	0.00030	0.130
76 Os	0.957	0.130	0.295	0.281	0.16	0.39	0.00029	0.128
77 Ir	0.958	0.120	0.308	0.294	0.15	0.45	0.00028	0.126
78 Pt	0.959	0.114	0.321	0.306	0.14	0.50	0.00028	0.124
79 Au	0.960	0.107	0.334	0.320	0.14	0.53	0.00028	0.122
80 Hg	0.962	0.107	0.347	0.333	0.13	0.56	0.00030	0.120
81 Tl	0.962	0.107	0.360	0.347	0.13	0.57	0.00032	0.118
82 Pb	0.963	0.112	0.373	0.360	0.12	0.58	0.00035	0.116
83 Bi	0.964	0.117	0.387	0.373	0.11	0.58	0.00038	0.113
84 Po	0.965	0.122	0.401	0.386	0.11	0.58	0.00042	0.111
85 At	0.966	0.128	0.415	0.399	0.10	0.59	0.00047	0.111
86 Rn	0.967	0.134	0.429	0.411	0.10	0.58	0.00052	0.110
87 Fr	0.967	0.139	0.443	0.424	0.10	0.58	0.00058	0.109
88 Ra	0.968	0.146	0.456	0.437	0.09	0.58	0.00064	0.108
89 Ac	0.969	0.153	0.468	0.450	0.09	0.58	0.00071	0.108
90 Th	0.969	0.161	0.479	0.463	0.09	0.57	0.00078	0.108
91 Pa	0.970	0.162	0.472	0.467	0.08	0.58	0.00084	0.139
92 U	0.970	0.176	0.467	0.489	0.08	0.57	0.00097	0.167
93 Np	0.971	0.187	0.466	0.502	0.07	0.57	0.011	0.192
94 Pu	0.971	0.205	0.464	0.514	0.05	0.56	0.013	0.198
95 Am	0.971	0.218	0.471	0.526	0.05	0.55	0.014	0.203
96 Cm	0.972	0.228	0.479	0.539	0.04	0.55	0.016	0.200
97 Bk	0.972	0.236	0.485	0.550	0.04	0.54	0.017	0.198
98 Cf	0.972	0.244	0.490	0.560	0.03	0.54	0.019	0.197
99 Es	0.972	0.253	0.497	0.570	0.03	0.54	0.021	0.196
100 Fm	0.973	0.263	0.506	0.579	0.03	0.53	0.023	0.194
101 Md	0.973	0.272	0.515	0.588	0.02	0.53	0.026	0.191
102 No	0.973	0.280	0.524	0.596	0.02	0.52	0.028	0.189
103 Lr	0.973	0.282	0.533	0.604	0.01	0.53	0.030	0.185
104 Rf	0.973	0.291	0.544	0.611	0.01	0.52	0.033	0.181
105 Ha	0.973	0.300	0.553	0.618	0.01	0.51	0.035	0.178
106 Sg	0.973	0.310	0.562	0.624		0.51	0.038	0.174
107 Ns	0.973	0.320	0.573	0.630		0.50	0.042	0.171
108 Hs	0.973	0.331	0.584	0.635		0.50	0.046	0.165
109 Mt	0.973	0.343	0.590	0.640		0.49	0.050	0.163
110	0.973	0.354	0.598	0.644		0.48	0.054	0.158

Table 4. Estimated Percent Uncertainties for Fluorescence and Coster-Kronig Yields

Z(range)	$\omega_K$	$\omega_{L_1}$	$\omega_{L_2}$	$\omega_{L_3}$	$f_{12}$	$f_{13}$	$f_{23}$
5-10	40-10 <sup>a</sup>						
10-20	10-5	>30 <sup>a</sup>	>25 <sup>a</sup>	>25 <sup>a</sup>	10 <sup>a</sup>	5 <sup>a</sup>	40 <sup>a</sup>
20-30	5-3	30 <sup>a</sup>	25 <sup>a,b</sup>	25	15 <sup>a</sup>	10 <sup>a</sup>	
30-40	3	30 <sup>b</sup>	25	20	15	10	30-20
40-50	2	30-20 <sup>b</sup>	25-10	20-10	20 <sup>b</sup>	10 <sup>b</sup>	20
50-60	2-1	20-15	10	10-5	20	15	20
60-70	1	15	10-5	5	15	10	20-15 <sup>a</sup>
70-80	1	15 <sup>b</sup>	5	5-3	20 <sup>b</sup>	10-5 <sup>b</sup>	15
80-90	<1	15	5	3	10	5	15
90-100	<1	15-20	10 <sup>b</sup>	3-5	10-50	5-10	15 <sup>b</sup>
100-110	1	20	10	5	50-100	15	20

<sup>a</sup> In these regions, yields for molecules and solids may differ from those for atoms by more than the values quoted.

<sup>b</sup> Near breaks in the yield curves, uncertainties may exceed those listed.

FIGURE 1.5 – Rendements de fluorescence et de Coster-Kronig [15][16].

## 1.4 Pouvoir d'arrêt

Le faisceau d'ions qui pénètre dans la matière perd son énergie à cause des interactions inélastiques avec les électrons liés. Plus le faisceau avance dans la matière, plus il perd d'énergie. Il peut même aller jusqu'à s'arrêter si l'épaisseur de l'échantillon-cible est suffisamment importante. Pour rendre compte de ce phénomène, les physiciens ont exprimé la perte d'énergie d'un ion par unité de masse superficielle traversée au moyen du pouvoir d'arrêt :

$$S(E) = \frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx} (cm^2 MeV/g) \propto \frac{Z^2 m}{E} \quad (1.15)$$

où  $\rho$  est la densité du matériau et  $x$  la profondeur de pénétration. Pour un faisceau de particules incidentes, la perte d'énergie  $\frac{dE}{dx}$  en fonction de l'énergie incidente a l'allure suivante (figure 1.6) :

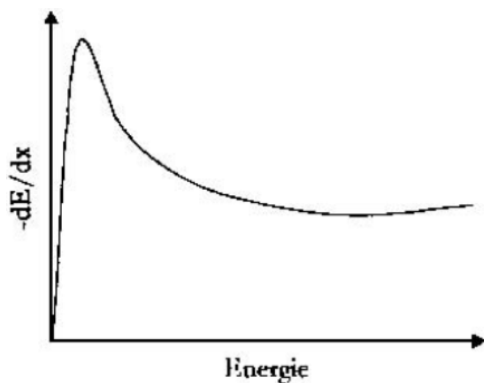


FIGURE 1.6 – Perte d'énergie  $\frac{dE}{dx}$  en fonction de l'énergie incidente.

Il est dès lors évident que des particules fortement énergétiques vont moins interagir avec la matière. Les particules d'énergie faible, correspondant à la valeur du pic, sont celles qui vont interagir le plus efficacement avec l'échantillon-cible. Il est assez simple de définir le parcours des particules dans la matière et de connaître l'épaisseur de la zone sondée :

$$R(E) = \int_{E_0}^0 \frac{dE}{S(E)} \quad (1.16)$$

Il est ainsi clair que des protons d'énergie incidente  $E_0$  permettent une analyse d'un échantillon-cible plus en profondeur que des particules  $\alpha$  de même énergie. Cependant, le facteur déterminant de l'interaction est le rapport des vitesses du projectile et de l'électron lié. A partir de  $E = mc^2$ , le rapport entre l'énergie et la masse devient primordiale. Un faisceau de 12 MeV  $\alpha$  (de masse 4) est donc comparable à un faisceau de protons (de masse 1) de 3 MeV.

## 1.5 Atténuation des rayons X

L'interaction avec la matière diminue l'intensité d'un faisceau incident de rayons X. Cette atténuation dépend du type de la cible (électrons, atomes, noyaux) avec laquelle le photon interagit et du type d'événement (absorption, déviation, production de paire) qui a lieu [17]. La probabilité d'occurrence de chacun de ces processus indépendants peut être exprimée à l'aide de la section efficace de collision par atome. La somme de toutes ces sections efficaces est donc la probabilité  $\sigma_{tot}$  que le rayon X incident ait une interaction lorsqu'il traverse un film mince qui contient un atome par  $\text{cm}^2$  placé à  $90^\circ$  par rapport à sa trajectoire.

$$\sigma_{tot} = \tau + \sigma_R + \sigma_C + \dots \quad (1.17)$$

où  $\tau$  est la section efficace totale d'absorption photoélectrique,  $\sigma_R$  la section efficace Rayleigh (collision élastique) et  $\sigma_C$  la section efficace Compton (collision inélastique).

La section efficace totale multipliée par le nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$  dans l'absorbeur permet de définir le coefficient linéaire  $\mu^*$  par centimètre de parcours dans l'absorbeur :

$$\mu^* \frac{1}{\text{cm}} = \sigma_{tot} \frac{\text{cm}^2}{\text{atome}} \rho \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} \frac{N_0 \text{ atome}}{A} \frac{1}{g} \quad (1.18)$$

où  $\rho$  est la densité de l'absorbeur,  $N_0$  le nombre d'Avogadro et  $A$  la masse atomique de l'absorbeur.

Le coefficient d'atténuation massique  $\mu$  ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ) est alors défini comme le rapport du coefficient d'atténuation linéaire et de la densité de l'absorbeur.

L'atténuation des rayons X dans un matériau homogène est décrite de manière exponentielle suivant la formule :

$$I = I_0 e^{-\mu^* x} \quad (1.19)$$

où  $I$  est l'intensité transmise,  $I_0$  l'intensité incidente et  $x$  l'épaisseur de l'absorbeur en centimètre.

Dans un matériau non-homogène, le coefficient d'atténuation massique peut être évalué approximativement à partir des coefficients  $\mu_i$  et des concentrations relatives des différents éléments constitutifs.

Hubbel a publié en 1984, une base de donnée étendue des coefficients d'atténuation des rayons X [18].

Les tables montrent que le coefficient  $\mu$  diminue quand l'énergie des rayons X augmente. Il s'en suit que les rayons X de faible énergie perdent beaucoup plus rapidement en intensité.

## 1.6 Détecteurs dédiés à la PIXE

Deux types de détecteurs sont utilisés pour la méthode PIXE, au laboratoire de Liège. Le premier détecteur est dédié à la détection des rayons X de basses énergies tandis que le second est quant à lui dédié aux rayons X de hautes énergies. Le premier détecteur, de type Si(Li), fonctionne avec une efficacité de l'ordre de 90% dans une gamme d'énergie à détecter allant de 5 à 25 keV mais cette efficacité chute pour arriver aux alentours de 10% pour des rayons X supérieurs à 60 keV. Il est généralement utilisé pour définir la matrice de l'échantillon. Le second détecteur, de type Ultra-LEGe, fonctionne avec une meilleure efficacité dans la gamme d'énergie allant de 20 à 80 keV. Il est généralement utilisé pour déterminer les traces présentes dans l'échantillon. La résolution des deux détecteurs est essentiellement la même et est de 130 à 170 eV à une énergie de 5,9 keV.

### 1.6.1 Efficacité des détecteurs

Les méthodes de dépouillements des spectres demandent la connaissance de l'efficacité des détecteurs, qui est le produit de l'efficacité de la géométrie (dimensions, couches absorption (Be, glace, Au,...) et de l'efficacité intrinsèque du cristal.

L'efficacité du détecteur dépend de l'énergie des rayons X à détecter. En effet comme le montre la figure 1.7, l'efficacité du détecteur est très faible aux basses énergies et a tendance à redescendre à partir d'une dizaine de keV.

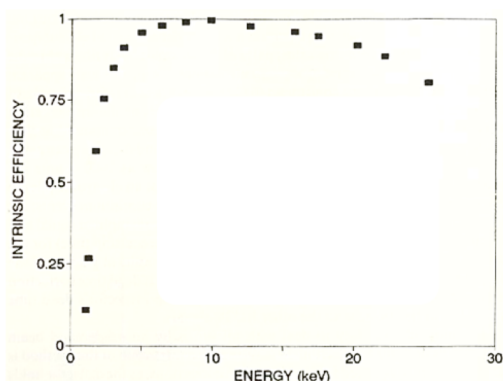


FIGURE 1.7 – Courbe typique de l’efficacité d’un détecteur X de type Si(Li) [1].

## 1.7 Spectre typique

En plus des rayons X caractéristiques des éléments présents, un spectre typique PIXE (par exemple d’un échantillon de cuivre épais à la figure 1.8) contient d’autres contributions.

### 1.7.1 Artefacts de détection

- Pics d’échappement.

Les pics d’échappements sont des petits pics d’énergie inférieure de 1,74 keV par rapport aux raies  $K$  ou  $L$  correspondantes dans le cas des détecteurs au silicium (et inférieure de 9,886 keV dans le cas des détecteurs au germanium). Ces pics proviennent d’une conversion incomplète des rayons X en paires électrons-trous. En effet les photons X subissent l’absorption photoélectrique dans le détecteur, le plus souvent par interaction avec un électron de la couche  $K$  du silicium. L’électron éjecté va alors heurter d’autres atomes de Si et produire d’autres paires électrons-trous. L’atome de Si original se désexcite en émettant soit un rayon X caractéristique (1,74 keV) ou un électron Auger, qui peuvent être tous les deux absorbés dans le volume actif du détecteur de telle manière que l’énergie totale du photon X incident soit déposée dans le détecteur. Cependant, quand la première ionisation se passe près de la surface du détecteur, il y a une probabilité non négligeable que le rayon X du Si s’échappe sans aucune autre ionisation. L’ampli-



tude de tels de pics d'échappement est généralement inférieur à 1% du pic principal.

- Pics somme ("pile-up").

Ces pics apparaissent quand la chaîne d'acquisition électronique n'est plus capable de séparer des pulses d'énergies distinctes  $E_1$  et  $E_2$ . Si l'intervalle de temps entre les deux rayons X arrivant est plus court que la largeur du pulse issu de l'amplificateur, les deux pulses correspondants sont alors additionnés menant à l'apparition d'un continuum compris entre les énergies  $E_1$  et  $E_1 + E_2$ . Si l'analyseur de pulse est capable de rejeter les paires de pulses dans cette situation, il restera toujours un petit pic à l'énergie  $E_1 + E_2$ , correspondant à la détection simultanée de deux rayons X.

- "Peak Tailing".

La réponse d'un détecteur Si(Li) à une source monochromatique de rayons X est modélisée par un pic gaussien, et du côté des basses énergies par une ou deux queues exponentielles et un plateau. Ces queues affectent la limite de détection des éléments dont les raies des rayons X ont une énergie plus faible que l'énergie des raies des éléments présents dans la matrice. Par exemple, c'est le cas d'alliages métalliques contenant de hautes concentrations d'éléments lourds (Hg, Au, Pb,...). De plus, ce phénomène est caractéristique de chaque détecteur et doit être connu pour permettre une analyse quantitative.

Ces phénomènes peuvent être atténués de deux manières :

- La présence d'un filtre pour atténuer la détection des éléments  $Z + 1$  et  $Z + 2$ . Par exemple, un filtre de cobalt permet d'atténuer le nombre de rayons X du cuivre arrivant au détecteur. En effet, les rayons X du cuivre sont capables d'ioniser les atomes de cobalt. Il résultera malheureusement l'apparition d'un pic caractéristique du filtre dans le spectre.
- La diminution du courant de particules incidentes permet de diminuer directement le nombre de rayons X émis par l'échantillon. Cela permet d'éviter les pics somme puisque moins de rayons X arrivent sur le détecteur pour un même intervalle de temps. De plus, cette diminution

permet de diminuer le temps mort de détection de l'électronique et ainsi de s'assurer d'une bonne linéarité entre le nombre de coups dans le spectre et la dose. Les expériences sont généralement effectuées avec des taux de comptages inférieurs à 4000 cps/s.

De surcroît, la détection des rayons X est parasitée par des bruits de fonds inévitables.

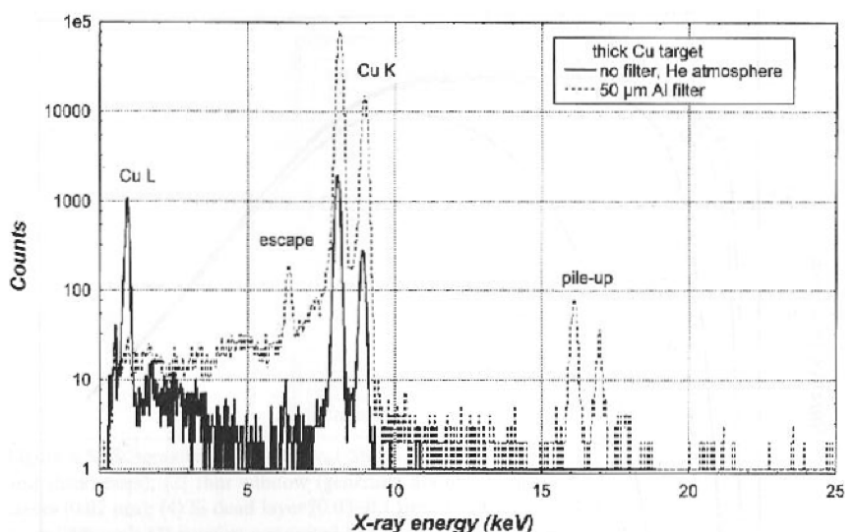


FIGURE 1.8 – Exemple de spectre PIXE d'un échantillon épais cuivreux.

### 1.7.2 Bruits de fond

- Continuum Compton.

Le continuum Compton provient de l'effet Compton, dans l'échantillon et dans le détecteur, des rayons  $\gamma$  induits par les particules incidentes avec les noyaux légers (Na, Al, Si, F). Plus l'énergie des particules incidentes est importante, plus la probabilité qu'il y ait production de rayons  $\gamma$  par les réactions nucléaires augmente. C'est pour cela que les faisceaux sont généralement limités à 3 MeV dans le cas des protons. Cependant, des faisceaux plus énergétiques sont également utilisés en

veillant à ne pas activer le matériau à analyser.

- Bremsstrahlung des particules incidentes.

L'intensité du bruit de fond Bremsstrahlung émis par une particule chargée est proportionnelle au carré de sa décélération. Les forces coulombiennes sont de ce fait les forces qui entrent en compte. La section efficace théorique contient un terme en :

$$[(\frac{Z}{A})_{projectile} - (\frac{Z}{A})_{cible}]^2 \quad (1.20)$$

où  $Z$  et  $A$  représente le numéro atomique et la masse atomique. Il existe donc des couples projectile-cible où le bruit de fond de Bremsstrahlung primaire est nul. Par exemple : un faisceau de particules  $\alpha$  et un échantillon composé d'éléments légers.

- Bremsstrahlung des électrons secondaires.

La principale contribution au continuum de bruit de fond en PIXE est le Bremsstrahlung associé, non pas avec la décélération des particules incidentes, mais plutôt avec les électrons éjectés dans des collisions inélastiques. La figure 1.9 reprend schématiquement les trois contributions principales à ce Bremsstrahlung.

– SEB.

Le Bremsstrahlung des électrons secondaires (Secondary Electron Bremsstrahlung) est émis quand un électron éjecté est dévié par le champ coulombien d'un noyau d'un atome de l'échantillon. Pour une collision "frontale" entre un ion lourd de masse  $M_p$  et d'énergie  $E_0$  et un électron stationnaire libre de masse  $m_e$ , l'énergie cinétique maximum  $T_M$  qui peut être donnée à l'électron est  $(\frac{m_e}{M_p})E_0$ . Il s'ensuit que les photons SEB qui ont une énergie plus importante que  $T_M$  sont obligatoirement issus d'électrons éjectés des orbites internes. Le spectre SEB tombe alors rapidement en intensité au-delà de l'énergie  $T_M$  car la population des électrons libres et des orbites externes excède largement celles des orbites internes. De plus la distribution des moments des électrons liés élargit la distribution d'énergie des photons Bremsstrahlung fournissant ainsi un autre facteur contribuant à l'extension aux hautes énergies.

– QFEB.

Le Bremsstrahlung des électrons quasi-libres (Quasi-Free Electron Bremsstrahlung) est émis quand la vitesse du projectile  $V_p$  est tellement éloignée de la vitesse des électrons en orbite que ces électrons peuvent être considérés comme libre et au repos. Alors un électron peut être dévié par le champ coulombien du projectile et émettre du QFEB. L'énergie maximale est  $T_r = \frac{1}{2}m_e V_p^2$ .

– AB.

Quand un électron éjecté retombe à son état initial dans l'atome ionisé, le Bremsstrahlung atomique (Atomic Bremsstrahlung) est émis. Si l'état final correspond à un continuum, alors le processus comprenant à la fois l'ionisation et l'émission de photon est appelé ionisation radiative. Le Bremsstrahlung atomique est la principale contribution au spectre continu pour les photons d'énergies supérieures à  $T_m$ .

Pour un proton de 3 MeV,  $T_m = 6$  keV et  $T_r = 1,6$  keV.

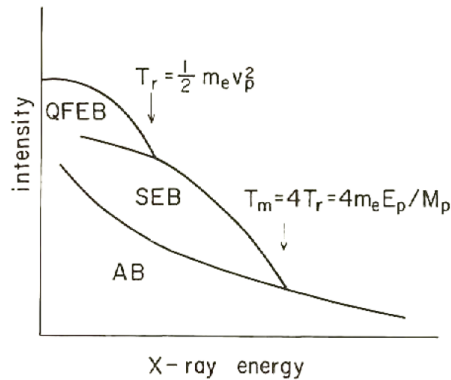


FIGURE 1.9 – Bremsstrahlung.

### 1.7.3 Limite de détection

Généralement un pic de rayon X est considéré détectable si son intensité dépasse la valeur de plus de 3 fois la déviation standard de la fluctuation du bruit de fond à la base du pic. Le bruit de fond comprend les contributions du Bremsstrahlung, des  $\gamma$  issus de réactions nucléaires et les possibles superpositions de pics de rayon X. L'intensité est généralement intégrée sur une largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic, bien que la littérature contienne des limites de détection (LOD) estimées sur deux voire trois FWHM. L'utilité des programmes de dépouillement est dès lors accentuée s'ils sont capables de fournir cette limite de détection [19]. Celle-ci permet une décision objective pour pouvoir déterminer la présence ou non d'un élément au sein de l'échantillon analysé. Les concentrations juste supérieures à la LOD font l'objet d'une attention particulière puisqu'elles ont une incertitude statistique importante. Keith *et al.* [20], ont suggéré l'utilisation d'une limite de quantification (LOQ) pour définir la limite inférieure de concentration détectable pour une technique analytique. Elle est définie comme étant égale à 10 fois la déviation standard [21].

En l'absence de pics d'interférences et si toutes les radiations proviennent de l'échantillon, la LOD est uniquement déterminée par le bruit de fond continu. La LOD peut alors être améliorée de différentes manières :

- L'augmentation de la dose totale permet d'augmenter l'intensité des pics (le nombre de coups) du spectre. Celle-ci peut être augmentée en intensifiant le courant du faisceau ou en prenant un temps d'analyse supérieur. La déviation standard du bruit de fond  $B$  étant  $\sqrt{B}$ , la LOD sera alors améliorée d'un facteur correspondant à la racine carrée du facteur d'augmentation de la dose.
- Le détecteur peut être placé plus proche de l'échantillon afin de collecter plus de rayons X. L'angle de détection est alors plus grand et de plus, il y a moins de matière entre le détecteur et l'échantillon susceptible d'atténuer l'intensité des rayons X. Il faut cependant faire attention au temps mort de la chaîne d'acquisition du détecteur et ne pas excéder la détection de 4000 cps/s.
- La résolution intrinsèque du détecteur Si(Li) est également un facteur important. Meilleure est la résolution, plus petite est la LOD puisque le bruit de fond est intégré sur une plus petite région du spectre. En effet, la FWHM est, par définition, plus petite si la résolution est meilleure.

## 1.8 Exemple d'application

Grenats mérovingiens belges.

Une étude réalisée par F.Mathis, O.Vrielynck, K.Laclavetine, G.Chêne et D.Strivay.

De récentes fouilles archéologiques menées sur la commune de Grez-Doiceau (province du Brabant Wallon, Belgique) par Olivier Vrielynck, archéologue au Ministère de la région Wallonne, ont permis de mettre à jour une des plus importante nécropole mérovingienne jamais découverte en Belgique. Cette nécropole de 436 tombes a été utilisée pendant environ deux siècles et demi. Certaines des tombes se sont révélées très riches, en particulier deux d'entre elles, et ont fourni un important mobilier funéraire, entre autre 60 bijoux ont été retrouvés la plupart de style cloisonné, incrustés de grenats (ce qui représente environ 450 grenats sur le site). L'importance de ce site et du mobilier découvert ainsi que sa cohérence et sa longue période d'occupation nous ont conduits à étudier de manière plus approfondie une partie de son mobilier et en particulier les grenats. En effet, la provenance de ces pierres représente une problématique archéologique importante si on considère le grand nombre de pierres utilisées pendant cette période et surtout le fait qu'elles n'étaient pas réemployées à cause de la coutume qui consistait à les enterrer avec leur propriétaire. Plusieurs études en particulier en France ont été menées sur la provenance des grenats. Elles ont permis tout d'abord de mettre au point un protocole d'analyses non-invasives particulièrement adapté, basé sur l'utilisation de PIXE en faisceau extrait et de microspectrométrie Raman. Ces études ont également permis d'identifier cinq groupes de provenance et d'associer à quatre d'entre eux une origine géographique. Ces origines géographiques sont diversifiées (Inde, Sri-Lanka, Bohême) et impliquent l'existence de routes commerciales très développées. Le but de cette étude est de comparer ces résultats, obtenus sur une collection d'objets variés, à une étude d'un corpus bien défini dont la provenance et la datation sont connues et bien documentées. Cette étude a de plus été menée avec des outils analytiques similaires (PIXE en faisceau extrait) et les dispositifs d'analyses ont été inter-calibrés par l'utilisation de géostandards communs et par des analyses croisées qui ont pu être réalisées grâce au programme Européen Eu-Artech. En 2007, 178 grenats montés sur 22 bijoux ont été étudiés au sein du centre européen d'archéométrie. Ces bijoux étaient distribués dans 13 tombes. Deux d'entre elles sont les plus prestigieuses trouvées dans la nécropole. Ces bijoux ont été datés par le style d'une part, et d'autre part, par les objets associés présents dans les tombes. Il apparaît que la grande

majorité des grenats analysés (plus de 90%) correspondent au type 1 identifié par Calligaro *etal.*, à savoir des grenats almandins qui proviennent d'Inde. Les différents groupes sont déterminés par les rapports de concentration de plusieurs éléments. Le graphique, à la figure 1.10, représente le pourcentage d'oxyde de calcium par rapport au pourcentage d'oxyde de magnésium présent dans les différents objets. Il montre la présence de trois groupes bien distincts. La figure 1.11 reprend les photographies de grenats mérovingiens sertis. L'ensemble des résultats et les conclusions sont présentés dans l'article [22].

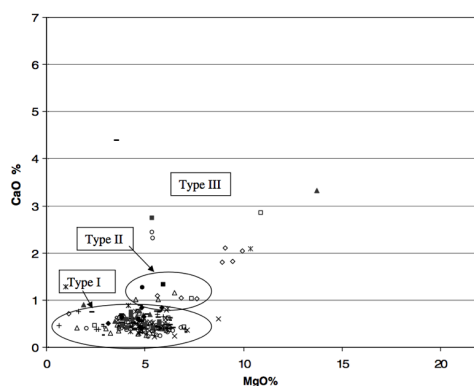


FIGURE 1.10 – Graphique du rapport des concentrations de MgO et de CaO pour un corpus de grenats mérovingiens



FIGURE 1.11 – Photographies de grenats mérovingiens sertis.





# Chapitre 2

## La méthode RBS

### Sommaire

<b>2.1</b>	<b>La méthode RBS . . . . .</b>	<b>39</b>
<b>2.2</b>	<b>Section efficace . . . . .</b>	<b>43</b>
<b>2.3</b>	<b>Exemple d'application . . . . .</b>	<b>45</b>

### 2.1 La méthode RBS

La méthode RBS, “Rutherford Backscattering Spectroscopy”, est basée sur la rétrodiffusion élastique de particules chargées incidentes  $(Z_1, M_1)$ , généralement légères (ex : p,  $\alpha$ ), d'énergie de l'ordre de quelques MeV suite à une interaction coulombienne avec un noyau de l'échantillon-cible  $(Z_2, M_2)$  (figures 2.1 et 2.2). Il faut pour se faire que la distance entre les deux noyaux reste plus grande que les distances caractéristiques des forces nucléaires [2].

L'énergie des particules rétrodiffusées  $E_1$  est proportionnelle à l'énergie des particules incidentes  $E_0$  :

$$E_1 = K E_0 \tag{2.1}$$

$$K = \left\{ \frac{\sqrt{(\frac{M_2}{M_1})^2 - \sin^2 \theta} + \cos \theta}{(1 + \frac{M_2}{M_1})} \right\}^2 \tag{2.2}$$

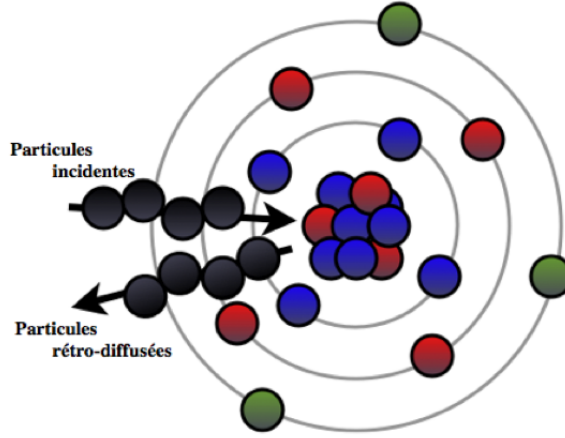


FIGURE 2.1 – Schéma de principe de la méthode RBS.

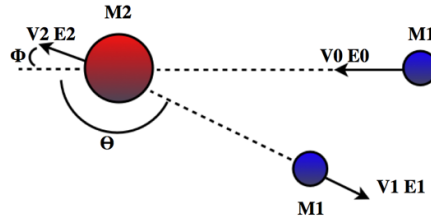


FIGURE 2.2 – Schéma de principe de la méthode RBS.

Le terme  $K$  est appelé le facteur cinématique. Il dépend de la masse des particules incidentes, de la masse des particules cibles et de l'angle de détection. La capacité à différencier les masses dans les spectres dépend de ce facteur  $K$ . Cette résolution est meilleure pour des  $E_0$  et  $M_1$  élevées et pour un angle  $\theta$  de détection plus proche de  $180^\circ$ . De ce fait, il est clair que des particules  $\alpha$  permettent d'obtenir de meilleures résolutions en masse.

La perte d'énergie de la particule rétrodiffusée est due à deux processus :

- l'énergie perdue lors de l'interaction qui a mené à la rétrodiffusion avec un noyau d'un atome de l'échantillon-cible.
- l'énergie perdue lors de l'interaction avec les électrons de l'échantillon-cible en fonction du pouvoir d'arrêt du matériau.

Le premier processus dépend directement de la section efficace de rétrodiffusion du noyau et donc de sa masse et de son numéro atomique. Pour un angle de détection donné, deux noyaux d'éléments différents vont donc rétrodiffuser la particule à des énergies différentes et de ce fait produire des pics séparés sur le spectre lors d'une analyse. Ces pics, caractéristiques des éléments constitutifs du matériel, permettent une analyse de la composition d'un échantillon-cible. La hauteur de ses pics donne également accès aux concentrations relatives.

La perte d'énergie due au second processus est quant à elle proportionnelle à la densité électronique et à la quantité de matière traversée. Cette perte d'énergie va donc diminuer l'énergie à laquelle la particule incidente va être rétrodiffusée sur le noyau (figure 2.3). De ce fait, au lieu d'obtenir un pic étroit<sup>1</sup> sur le spectre, il apparaîtra plutôt un pic qui s'étend vers les énergies plus basses au fur et à mesure que la particule traverse la couche de ce matériau. De plus, les éléments qui apparaissent seulement en profondeur de l'échantillon verront également leurs pics décalés d'une énergie correspondant à l'énergie perdue dans la matière que la particule a dû parcourir dans la cible avant d'atteindre le noyau de cet élément et d'en ressortir.

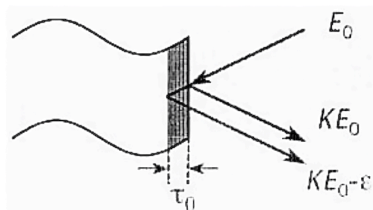


FIGURE 2.3 – Perte d'énergie dans une couche de surface [23].

En pratique, il est donc possible d'obtenir un profil en profondeur en plus de la composition :

- La position des fronts des pics permet de connaître la composition de l'échantillon. Le spectre obtenu avec une cible épaisse présente une

---

1. de largeur déterminée par la résolution angulaire et énergétique, de l'ordre de quelques keV,

forme particulière constituée de marches successives ayant un front dont l'énergie est caractéristique de chaque élément constitutif. La méthode permet, de surcroît, la détection d'élément léger ( $Z > 5$ ) comme le carbone et l'oxygène et est de ce fait complémentaire à la PIXE ( $Z \geq 11$ ).

- Le décalage et la largeur des pics donnent la profondeur de la couche. Le spectre RBS contient une information intrinsèque sur la distribution en profondeur des éléments constitutifs de la cible, du fait de la perte d'énergie  $\delta E$  de l'ion dans son trajet aller et dans son trajet retour :  $\delta E = \Delta E_{Aller} + \Delta E_{Retour} = (E_0 - E_x) + (K E_x - E_f)$ , avec  $E_x$ , l'énergie à une profondeur  $x$  sous la surface avant rétrodiffusion et  $E_f$ , l'énergie finalement détectée. L'épaisseur traversée peut alors être estimée :

$$\delta x = \delta E K \left( \frac{dE}{dx} \right)_{E_0} + \delta E K \left( \frac{dE}{dx} \right)_{E_f} \frac{1}{\cos(\pi - \theta)}. \quad (2.3)$$

- La hauteur des pics rend compte des concentrations relatives.

Dans le premier dessin de la figure 2.4, le pic A se termine bien à la position en énergie  $K_A E_0$  qui correspond bien à l'énergie des particules rétrodiffusées à la surface. Par contre, le pic B est légèrement décalé par rapport à l'énergie  $K_B E_0$  puisque les particules incidentes ont perdu de l'énergie en traversant la couche externe A. Il est important de noter que dans cet exemple  $M_S < M_B < M_A$ . Si ce n'était pas le cas, en fonction de la masse et des épaisseurs des couches, il pourrait y avoir une permutation de la position des pics A et B et même une superposition des deux pics.

Les spectres RBS sont de ce fait souvent compliqués à interpréter. Des programmes comme RUMP [24] et SIMNRA [25] permettent de simuler des spectres d'échantillon complexe afin de trouver l'échantillon qui colle le mieux au résultat de l'analyse. Les spectres présentent une succession de pics étroits pour une cible mince et s'élargissent pour une cible épaisse. La méthode ne permet par contre pas d'obtenir des informations sur la structure chimique de l'échantillon-cible. Un autre désavantage de la méthode est la nécessité d'utiliser un faisceau de particules ayant une dispersion en énergie très petite (de l'ordre du keV) pour pouvoir séparer distinctement les pics issus des différents éléments de l'échantillon.

La méthode RBS est généralement utilisée simultanément à une analyse

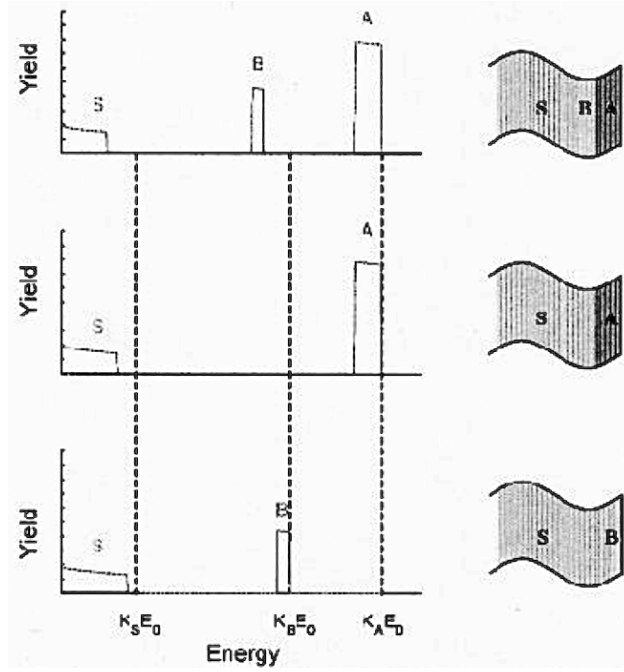


FIGURE 2.4 – Spectres RBS associés aux cas simples [23].

PIXE qui permet de connaître la composition de l'échantillon mais pas l'organisation des couches de celui-ci. Les deux méthodes sont complémentaires.

## 2.2 Section efficace

- Section efficace “Rutherford”.

La section efficace de réaction, c'est-à-dire la probabilité d'interaction entre deux particules, est proportionnelle à  $(\frac{Z_1 Z_2}{E_0})^2$ .

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \sqrt{1 - \left[ \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right]^2} + \cos \theta \right\}^2}{\sqrt{1 - \left[ \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right]^2}} \quad (2.4)$$

La formule montre bien la dépendance de la section efficace par rapport à :

- $Z_1^2$ .
- $Z_2^2$ .
- $\frac{1}{E^2}$ , Une particule rapide interagit moins avec la matière.
- $\frac{1}{\sin^4\theta}$ , La section efficace diminue fortement lorsque l'angle de diffusion diminue. La diffusion sera la plus grande à  $180^\circ$ , mais en pratique l'angle de détection sera d'environ  $150\text{--}170^\circ$  à cause de l'encombrement mécanique des différents éléments de la zone de travail.

- Section efficace “Non-Rutherford”.

Les mesures expérimentales ont démontré que les sections efficaces varient en réalité de celles dites de “Rutherford” à haute et basse énergies pour toutes les paires projectile-cible [26]. Les variations à basse énergie sont causées par un écran partiel de la charge du noyau par les orbites électroniques.

Les résultats de plusieurs investigations indiquent que les corrections sont données avec une bonne précision par L’Ecuyer [27] :

$$\frac{\sigma}{\sigma_R} = 1 - \frac{0,049Z_1Z_2^{\frac{4}{3}}}{E_{CM}} \quad (2.5)$$

ou par Wenzel et Whaling [28],

$$\frac{\sigma}{\sigma_R} = 1 - \frac{0,0326Z_1Z_2^{\frac{7}{2}}}{E_{CM}} \quad (2.6)$$

pour les analyses des ions légers avec des faisceaux de l'ordre du MeV.

Andersen *et al.* ont également proposé un modèle pour tous les angles [29].

Les variations à haute énergie du comportement des sections efficaces sont, quant à elles, causées par la présence de forces nucléaires entre les deux particules du couple projectile-cible. Des mesures récentes et les calculs de Bozoian *etal.* [30], ont donné des limites pour les sections efficaces pur-Rutherford :

- pour les protons :

$$E_{H,E}^{NR} \approx (0,12 \pm 0,01)Z - (0,5 \pm 0,1) \quad (2.7)$$

- pour les particules  $\alpha$  :

$$E_{H,E}^{NR} \approx (0,25 \pm 0,01)Z - (0,4 \pm 0,2) \quad (2.8)$$

## 2.3 Exemple d'application

Une étude réalisée par S. Bols, G. Chêne et T. Dupuis.

L'étude de la technologie de la dorure d'un point de vue théorique sur base de contributions scientifiques d'auteurs modernes a été comparée à l'étude d'artefacts dorés par la méthode RBS.

Les informations obtenues sont porteuses de diverses informations :

- Elle permet d'observer le degré élevé de la technologie des anciennes civilisations, par exemple dans le cas de la dorure au feu.
- Elle représente une aide complémentaire à l'identification, à la datation ou à la provenance.
- Elle contribue également à la connaissance de l'histoire de l'œuvre, notamment dans le cas d'une restauration antique ou contemporaine.



FIGURE 2.5 – Bague dorée datée du troisième siècle.

L'exemple explicité ici est l'analyse d'une bague (figure 2.5) dorée datée du troisième siècle. Le spectre RBS, repris à la figure 2.6 met en évidence la présence d'une diffusion importante de par l'allure courbée du palier correspondant à la couche de dorure d'une épaisseur de  $3\text{ }\mu\text{m}$ . De plus, la méthode PIXE a prouvé la présence d'éléments difficilement visibles sur le spectre RBS comme le mercure, l'étain, le cuivre et l'argent. A partir des informations des deux méthodes, la composition et l'épaisseur de la couche de dorure permet de confirmer l'utilisation d'un processus d'application dit "Fire gilding". Ce processus consiste à appliquer un amalgame de mercure et d'or à la surface d'un objet et ensuite de l'exposer à de fortes températures pour évaporer le mercure qui va ainsi laisser l'or seul en surface. La présence de résidu de mercure est dès lors une preuve de l'utilisation de la méthode.

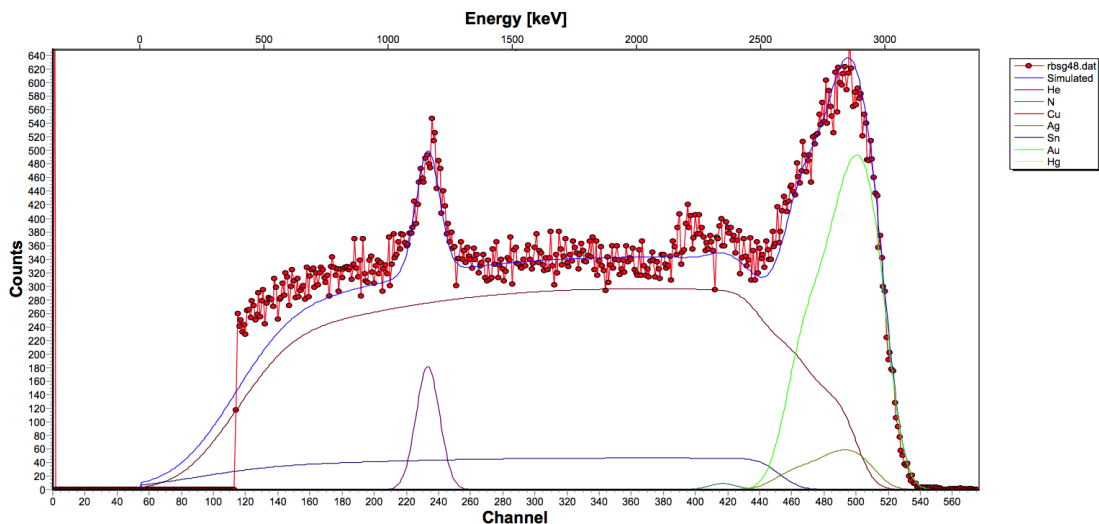


FIGURE 2.6 – Spectre RBS de la bague - 3,12 MeV proton.

Un corpus d'échantillons dorés a fait l'objet d'une analyse au sein du laboratoire dans le cadre du mémoire de S. Bols qui avait également pour objectif de mettre en valeur l'utilisation combinée de faisceaux de protons de 3,12 MeV et de particules  $\alpha$  de 8,7 MeV. Les résultats sont publiés dans l'article [31].



# Chapitre 3

## La méthode PIGE

### Sommaire

<b>3.1</b>	<b>La méthode PIGE . . . . .</b>	<b>47</b>
<b>3.2</b>	<b>Résonance . . . . .</b>	<b>48</b>
<b>3.3</b>	<b>Section efficace . . . . .</b>	<b>49</b>
<b>3.4</b>	<b>Réaction nucléaire . . . . .</b>	<b>49</b>
<b>3.5</b>	<b>Exemple d'application . . . . .</b>	<b>52</b>

### 3.1 La méthode PIGE

La méthode PIGE, “Particle Induced Gamma-ray Emission”, est basée sur les réactions nucléaires qui peuvent avoir lieu entre les particules incidentes et les noyaux des atomes de l'échantillon-cible [2]. En effet, si les ions accélérés interagissent avec les noyaux, il se peut que des noyaux composés se forment dans un état fortement excité. Ces mêmes noyaux peuvent alors, soit se désintégrer, soit se désexciter en émettant un rayonnement électromagnétique  $\gamma^1$ . Ce rayonnement est caractérisé par une énergie proportionnelle à la différence d'énergie des niveaux entre lesquels la transition s'effectue (figure 3.1).

La méthode d'analyse est profitable car les réactions nucléaires sont caractéristiques des isotopes. Il suffit alors de connaître les paramètres d'existence (énergie des particules incidentes, énergie du rayonnement à détecter,...) d'une réaction nucléaire des isotopes de l'échantillon à analyser. Cependant

---

1. Les noyaux peuvent aussi se désexciter en émettant des particules chargées. La méthode NRA (Nuclear Reaction Analysis) est basée sur ce phénomène.

pour produire ces réactions nucléaires, les particules incidentes doivent être assez énergétiques, de manière à être capables de vaincre la barrière coulombienne du noyau. Dans une grande partie des expériences, les particules incidentes utilisées sont des protons d'énergie de l'ordre de 3 MeV et de ce fait la détection des éléments légers de numéro atomique supérieur à 15 est impossible.

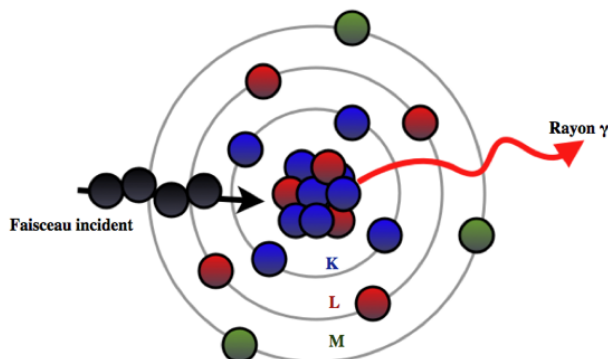


FIGURE 3.1 – Schéma de principe de la méthode PIGE.

L'énergie nécessaire à vaincre cette barrière coulombienne se calcule facilement grâce à la formule, où la particule “ $a$ ” tente d'interagir avec la particule “ $A$ ”.

$$E_C = \frac{Z_a Z_A}{m_a^{\frac{1}{3}} + m_A^{\frac{1}{3}}} \quad (3.1)$$

Si la figure 3.2 met bien en évidence la limitation des protons de 3 MeV vis-à-vis des éléments de numéro atomique supérieur à 15, il montre également qu'un faisceau de plus haute énergie est capable d'interagir avec des éléments plus lourds. En théorie, des particules  $\alpha$  de 12 MeV seraient donc capables de franchir cette barrière coulombienne pour des éléments allant jusqu'à  $Z = 35$ .

## 3.2 Résonance

L'existence de résonances, c'est-à-dire une augmentation localisée en énergie de la section efficace, permet de déterminer des profils en profondeur

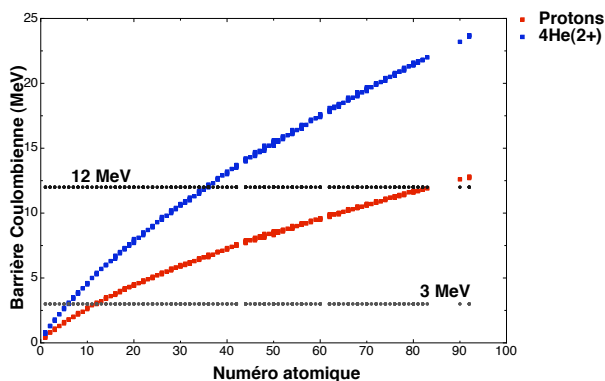


FIGURE 3.2 – Barrière coulombienne en fonction du numéro atomique de l'atome cible.

et évidemment la composition élémentaire de l'échantillon. En effet, l'énergie de la particule incidente va diminuer en traversant la matière jusqu'à arriver à l'énergie de résonance. La connaissance préalable de l'énergie de départ et de l'énergie de la résonance choisie permet donc de savoir à quelle profondeur a eu lieu la réaction nucléaire. Il est clair qu'il n'est généralement pas possible de déterminer la composition et de surcroît la concentration dans sa totalité en une seule mesure.

### 3.3 Section efficace

Dans les deux autres méthodes vues précédemment, la section efficace évolue de façon monotone avec l'énergie et le numéro atomique de l'atome cible. La section efficace de production du rayonnement  $\gamma$  dépend quant à elle de la réaction nucléaire envisagée. Même si les sections efficaces des réactions nucléaires sont moins élevées que les sections efficaces d'ionisation, la méthode PIGE est très sensible. Il suffit que l'énergie de particules incidentes soit assez grande pour surmonter la barrière coulombienne.

### 3.4 Réaction nucléaire

Les réactions nucléaires utiles à la méthode PIGE sont celles qui produisent un rayonnement  $\gamma$ . Il existe deux types de réactions qui sont privilégiées.

Les réactions nucléaires sont symbolisées par la notation  $B(A, C)D$ .

- ${}^ZB(A, \gamma){}^{Z+1}D$ . La particule incidente  $A$  (proton ou particule  $\alpha$ ) va interagir avec le noyau cible  $B$ . A la suite de cette interaction le noyau cible va être transmuté en un noyau  $D$  ( $Z + 1$ ) dans un état excité. La désexcitation de ce noyau va induire l'émission d'un rayonnement  $\gamma$
- $B(A, A'\gamma)B$ . La particule incidente  $A$  (proton ou particule  $\alpha$ ) va interagir avec le noyau cible  $B$  lorsqu'elle va passer dans son voisinage. A la suite de cette interaction le noyau cible va passer dans un état excité. La désexcitation de ce noyau va induire l'émission d'un rayonnement  $\gamma$ .
- $B(p, \alpha\gamma){}^{Z-1}E$ . Le proton incident va interagir avec le noyau cible  $B$  lorsqu'il va passer dans son voisinage. A la suite de cette interaction le noyau cible excité va émettre une particule  $\alpha$  et de ce fait va être transmuté en un noyau  $E$  ( $Z - 1$ ) dans un état excité. La désexcitation de ce nouveau noyau va induire l'émission d'un rayonnement  $\gamma$ .

La figure 3.3 représente les spectres de rayons  $\gamma$  que l'on peut détecter lors de la présence d'atome de sodium dans l'échantillon-cible [32]. Outre, les différentes réactions nucléaires envisagées et les énergies des rayons  $\gamma$  correspondantes, la figure propose également le nombre de coups théorique par unité de courant et d'espace pour différents faisceaux incidents de protons à différentes énergies.

La table 3.1 reprend les énergies des rayons  $\gamma$  des raies les plus couramment rencontrées lors des analyses PIGE en Archéométrie ainsi que les réactions nucléaires qui les ont produits.

Dans la pratique, la méthode PIGE est donc complémentaire à la méthode PIXE. La PIGE donne les informations pour les éléments de numéro atomique inférieur à 12 (ou 15 selon les chercheurs) et la méthode PIXE rend compte des éléments plus lourds.

Energie du $\gamma$ (keV)	Réaction nucléaire envisagée
197	$^{23}\text{Na}(p,p'\gamma)^{23}\text{Na}$
371	$^{48}\text{Ca}(p,n\gamma)^{48}\text{Sc}$
390	$^{25}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{25}\text{Mg}$
440	$^{23}\text{Na}(p,p'\gamma)^{23}\text{Na}$
511	Annihilation de particules $\beta$
585	$^{25}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{25}\text{Mg}$
844	$^{27}\text{Al}(p,p'\gamma)^{27}\text{Al}$
975	$^{25}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{25}\text{Mg}$
1014	$^{27}\text{Al}(p,p'\gamma)^{27}\text{Al}$
1266	$^{31}\text{P}(p,p'\gamma)^{31}\text{P}$
1273	$^{29}\text{Si}(p,p'\gamma)^{29}\text{Si}$
1362	$^{27}\text{Al}(p,\alpha\gamma)^{24}\text{Mg}$
1369	$^{24}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{24}\text{Mg}$
1612	$^{25}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{25}\text{Mg}$
1634	$^{23}\text{Na}(p,\alpha\gamma)^{20}\text{Ne}$
1636	$^{23}\text{Na}(p,p'\gamma)^{23}\text{Na}$
1779	$^{29}\text{Si}(p,p'\gamma)^{29}\text{Si}$
1809	$^{26}\text{Mg}(p,p'\gamma)^{26}\text{Mg}$
2127	$^{34}\text{S}(p,p'\gamma)^{34}\text{S}$
2230	$^{32}\text{S}(p,p'\gamma)^{32}\text{S}$
2391	$^{23}\text{Na}(p,p'\gamma)^{23}\text{Na}$

TABLE 3.1 – Réactions nucléaires envisagées en PIGE.

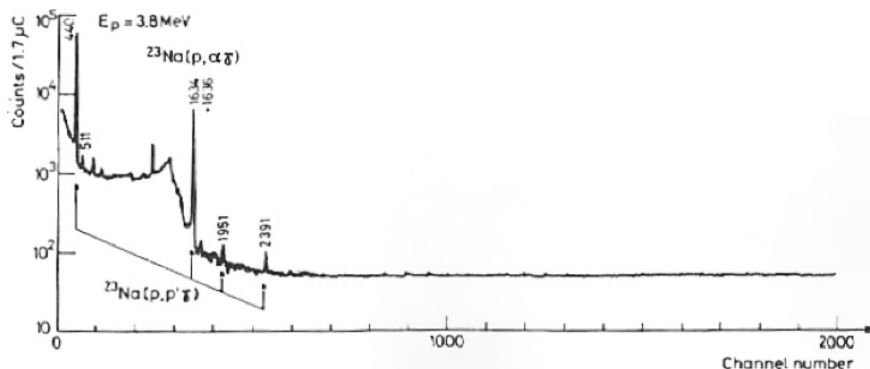


FIGURE 3.3 – Exemple de spectre PIGE sur une cible de sodium.

### 3.5 Exemple d'application

Une étude réalisée par L. Van Wersch.

“A l’époque mérovingienne, les récipients en verre sont rares et durant le VI<sup>e</sup> siècle, la vaisselle devient de plus en plus sporadique. Les produits en verre sont donc peu connus. Ces récipients sont retrouvés dans les sépultures richement dotées et dans les sites d’habitats supposés aristocratiques. Au Haut Moyen Âge, ces objets semblent donc avoir une certaine valeur. Aucun atelier primaire fabricant du verre n’a été découvert dans le nord-ouest de l’Europe. Seul le verre sodique, ou verre au natron, était utilisé en Gaule. Pour la production des récipients, une partie du verre antique a été récupérée mais des importations de verre brut oriental ont aussi perduré jusqu’au VII<sup>e</sup> et VIII<sup>e</sup> siècle. Contrairement à la céramique, le verre était donc tributaire d’échanges internationaux. L’étude des artefacts en verre viendra donc compléter celle de la céramique pour comprendre l’économie, la société, la culture et la vie quotidienne durant la période mérovingienne. Si les ateliers primaires ne semblaient pas se situer en Gaule mérovingienne, plusieurs ateliers secondaires sont par contre connus. Malgré ces découvertes, les techniques de production verrière du début du Moyen Âge restent mystérieuses. Leur connaissance est cependant nécessaire pour l’histoire du verre. En effet, vers le VIII<sup>e</sup> siècle, le verre sodique sera remplacé par le verre potassique, ou verre aux cendres de fougères. La production verrière sera donc complètement réorganisée. Les prémices de ce bouleversement sont peut-être déjà visibles dans la production mérovingienne. Les mécanismes qui régissaient la distribution des produits en verre sont également peu connus. Vu

le nombre de sites et d'artefacts disponibles, la vallée mosane est une zone d'étude propice pour répondre à ces questions. Dans un premier temps, les vases de trois cimetières mérovingiens ont été sélectionnés. Les verres issus de nécropoles sont généralement bien conservés et beaucoup plus nombreux que ceux des sites d'habitat où le verre est une "denrée rare". Les sites de Huy Saint-Victor, Hollogne-aux-Pierre et Fallais ont été choisis pour cette première approche. Ils se situent dans une aire géographique restreinte et couvrent l'ensemble de la période mérovingienne. Les questions abordées pour cette étude sont les suivantes : Y avait-il beaucoup de lieux d'approvisionnement différents dans cette région ? Les vases d'un cimetière sont-ils toujours issus d'un même atelier ? Quelles technologies les artisans mérovingiens ont-ils utilisées ? Pour répondre à ces interrogations en rapport avec la production et le commerce, l'analyse de la composition élémentaire des objets doit venir appuyer l'étude archéologique. Une étude similaire à également été réalisée sur des perles mérovingiennes retrouvées dans la nécropole de Bossut-Gotechain."

Dans ce contexte archéologique, décrit par Line Van Wersch, les analyses PIXE et PIGE ont été employées pour répondre aux différents questionnements. La combinaison des deux méthodes d'analyses a, dans le cas de l'étude des verres, une grande conséquence sur la précision des concentrations élémentaires des différents artefacts [33].



FIGURE 3.4 – Panse en verre de l'époque mérovingienne.

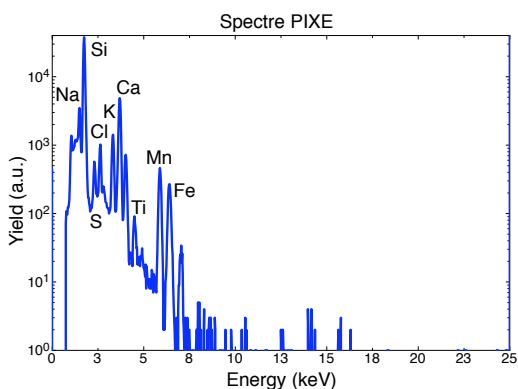


FIGURE 3.5 – Spectre PIXE de la panse.

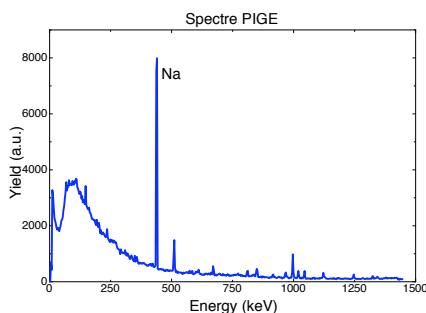


FIGURE 3.6 – Spectre PIGE de la panse.

La figure 3.4 reprend la photographie d'une panse en verre de l'époque mérovingienne analysée dans le cadre de ce travail.

Les figures 3.5 et 3.6 représentent les spectres PIXE et PIGE d'une panse trouvée dans une tombe dans le village de Fallais. Le traitement des données issues de la technique PIXE est à même de donner les concentrations en oxydes de cette panse, comme le montre la deuxième colonne de la table 3.2. Cependant, ces résultats ne tiennent pas compte d'un phénomène physico-chimique important dans le cas des verres. Les alcalins possèdent des propriétés migratoires importantes et surtout le sodium. Il résulte de ce fait l'apparition d'une couche à la surface de la plupart des verres appauvrie en sodium. Les deux méthodes d'analyses n'ont pas les mêmes profondeurs d'analyses, principalement à cause de l'absorption forte des rayons X par rapport à l'absorption des rayons  $\gamma$ . Les rayons X émis dans une couche plus profonde de l'échantillon doivent en effet traverser les couches moins



profondes de l'échantillon-cible avant de pouvoir être détectés. Une simplification pertinente serait de comparer, dans le cas des éléments très légers, la technique PIXE à une analyse de surface et la technique PIGE à une analyse plus profonde d'un plus grand volume de matière et donc plus représentative de l'objet tel qu'il était juste après sa fabrication. Dans le cas des verres, une disparité dans les concentrations obtenues en sodium avec les deux méthodes permet dès lors d'estimer l'épaisseur de la couche de corrosion présente en surface.

La colonne 3 de la table 3.2, reprend les concentrations en oxyde de la panse corrigée à l'aide de la concentration en  $\text{Na}_2\text{O}$  mesurée à l'aide de la méthode PIGE. Il se peut qu'il y ait des variations très importantes entre la concentration en  $\text{Na}_2\text{O}$  mesurée en PIXE et en PIGE. Ces variations permettent également de trier les verres selon leur type en fonction du rapport des concentrations PIXE et PIGE : Potash (rapport  $< 2$ ), Soda-Potash ( $2 < \text{rapport} < 20$ ) et Soda ( $20 < \text{rapport}$ ). Le graphique 3.7 reprend les rapports mesurés lors de l'étude réalisée le 19 janvier 2009 sur un corpus de verre issu de tombes mérovingiennes de la vallée mosane.

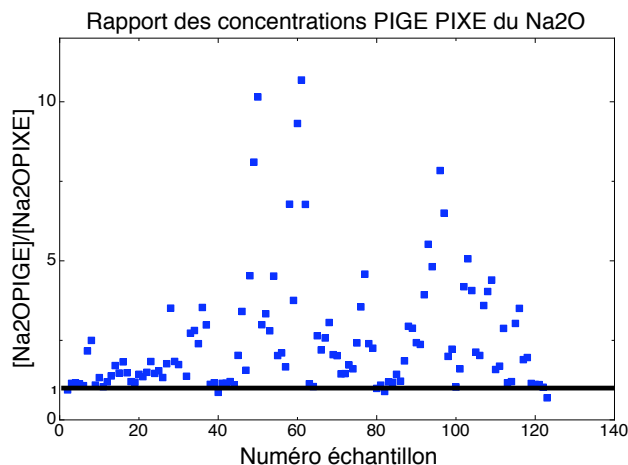


FIGURE 3.7 – Rapport des concentrations PIXE et PIGE en oxyde de sodium pour le corpus.

%	PIXE	PIGE+PIXE
Na2O	2,46	<b>16,68</b>
MgO	0	0
Al2O3	4,94	4,33
SiO2	74,64	65,42
P2O5	0	0
SO3	1,69	1,48
Cl	1,31	1,15
K2O	2,25	1,97
CaO	9,6	8,41
TiO2	0,2	0,18
MnO	1,51	1,32
Fe2O3	1,04	0,91
CoO	0,0063	0,0055
NiO	0,0008	0,0007
CuO	0,0125	0,011
ZnO	0,0211	0,0185
Ga2O3	0,001	0,0009
GeO2	0,0019	0,0017
Rb2O	0,0029	0,0025
SrO	0,0877	0,0769
Y2O3	0	0
ZrO2	0,0113	0,0099
Ag2O	0	0
SnO2	0,02	0,02
Sb2O5	0	0
BaO	0,06	0,05
PbO	0,03	0,02
Totaux	99,87	102,0604857

TABLE 3.2 – Table des oxydes de l'échantillon.

# Chapitre 4

## La méthode IBIL

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>La méthode IBIL . . . . .</b>	<b>57</b>
<b>4.2</b>	<b>Exemples d'application . . . . .</b>	<b>59</b>

---

### 4.1 La méthode IBIL

La méthode IBIL, “Ion Beam Induced Luminescence”, se définit comme une technique basée sur un phénomène non-thermique d’émission de radiations électromagnétiques par un matériau soumis à un bombardement de particules chargées accélérées [34]. Le matériau luminescent absorbe une énergie provenant du faisceau de particules ou d’ions, qui permet l’excitation des niveaux électroniques ; la relaxation se passe parmi d’autres processus, par l’intermédiaire de l’émission de lumière à partir des niveaux excités vers ceux de moindre énergie, de sorte que la radiation électromagnétique émise est caractéristique des niveaux électroniques propres du dit matériau. La technique IBIL est utilisée pour la caractérisation de défaut au sein du matériau grâce aux spectres d’émission de lumière qui représentent une “empreinte digitale” de la structure et de la composition. En général, tant que des effets tels que la modification du réseau cristallin du matériau irradié ne se produisent pas, les propriétés luminescentes de celui-ci ne dépendent pas de la source d’excitation, ce qui implique que les mêmes principes fondamentaux restent valables pour tous les types de luminescence, incluant par là également l’IBIL. Par exemple, si un faisceau de radiations électromagnétiques est capable d’exciter les niveaux d’énergies appropriés, il est alors possible d’observer un spectre similaire à celui qu’on aurait obtenu en utili-

sant un faisceau de particules accélérées. Elle permet également l'utilisation de bases de données d'autres techniques mieux établie basée sur la luminescence (comme la catho-luminescence) comme appui pour l'identification de défauts dans le matériau en faisant appel à la méthode IBIL.

Outre l'émission de lumière, il existe d'autres méthodes de désexcitation. Un système qui absorbe une énergie peut également émettre de la lumière au travers, par exemple, d'une impureté (activatrice), même s'il peut se désexciter sans émission (désexcitation non-radiative) réduisant de ce fait l'efficacité de la luminescence du matériau; et un transfert d'énergie entre différents centres de luminescence peut aussi avoir lieu, de telle manière qu'un centre de luminescence s'excite et au lieu d'émettre de la lumière comme un activateur le ferait, la cède à un autre centre de luminescence, qui lui va émettre. Dans ce cas, le deuxième centre est considéré comme l'activateur, le premier est considéré comme le co-activateur.

Dans le cas qui nous occupe, la lumière émise par le matériau dans le domaine de l'UV-visible, récupérée par l'intermédiaire d'une fibre optique et d'un spectromètre, va donc nous permettre d'obtenir des informations sur la structure du réseau cristallin ou des défauts de type structural. En effet, la position, la largeur, les intensités absolues et relatives mais aussi les constantes d'atténuation temporelles des différents pics d'émission donnent des informations sur la nature des liaisons chimiques ainsi que sur les défauts structuraux ou la présence d'impuretés.

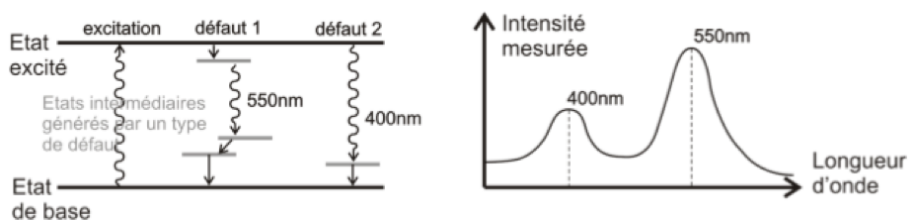


FIGURE 4.1 – Principe de l' IBIL.

Il n'est pas sans intérêt de noter que la source induisant la luminescence, c'est-à-dire, le faisceau de particules accélérées peut modifier la structure cristalline du matériau et dans certains cas extrêmes peut même mener à la destruction du matériau. Si certains laboratoires réalisent ce genre d'analyses sous vide, il est parfois préférable de réaliser ces expériences à l'air libre

afin de pouvoir avoir un refroidissement du matériau même s'il en résulte une diminution de l'intensité de lumière détectée. La présence d'air permet, en effet, d'évacuer la chaleur mais à pour inconvénient d'interagir avec les radiations électromagnétiques.

## 4.2 Exemples d'application

Corindon.

Une étude réalisée par H. Calvo del Castillo, N. Deprez, T. Dupuis, F. Mathis, A. Deneckere, P. Vandenabeele, T. Calderon et D. Strivay.

Les corindons sont considérés comme l'espèce de minéral la plus importante après le diamant dans le cadre de la gemmologie [35]. Ils sont connus depuis l'antiquité et sont le plus souvent rencontrés sous la forme de ses plus remarquables variétés : les rubis et les saphirs. La différenciation des gemmes traités ou non est une préoccupation importante pour la majorité des compagnies d'import de pierres précieuses. Les spécimens de corindons de faible qualité en provenance d'Asie apparaissent souvent traités (chaleur, oxyde de béryllium, fondant,...) de manière à améliorer leurs propriétés et les faire passer pour des minéraux précieux. Un corpus de corindons, des rubis et des saphirs de plusieurs origines différentes, traités et non-traités a fait l'objet d'une étude au sein du CEA à l'aide de plusieurs méthodes complémentaires : IBIL, PIXE, PIGE and RAMAN. L'IBIL a d'abord été utilisé pour détecter les impuretés et les défauts à l'intérieur des minéraux synthétiques et naturels. Les spectres présentent dans tous les cas les signaux du chrome en coordination octaédrique correspondant aux transitions  ${}^2E_2 - {}^4A_2$  et  ${}^2T_{(2g)} - {}^4A_2$  (figure 4.2). Il apparaît également dans le cas des rubis provenant de Mong Su, une différence d'intensité relative de la transition  ${}^2E_2 - {}^4A_2$  qui permet de séparer les rubis traités des non-traités, comme le montre la figure 4.3.

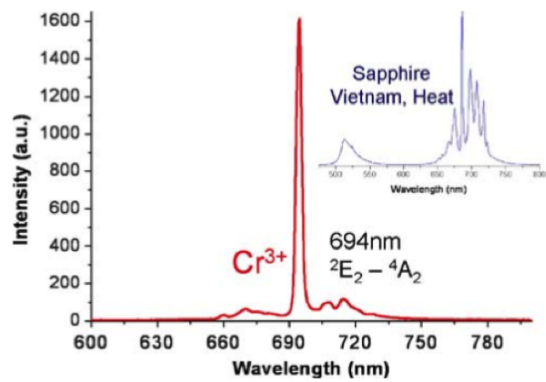


FIGURE 4.2 – Spectre IBIL d’un saphir provenant du Vietnam.

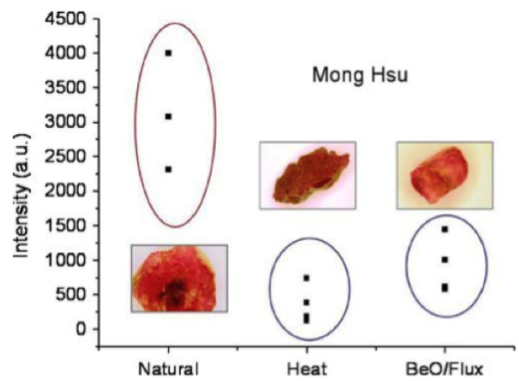


FIGURE 4.3 – Caractérisation des traitements appliqués aux rubis de Mong Hsu.

# Conclusion

Nous avons vu dans cette partie que l'utilisation des techniques par faisceaux d'ions (IBA) est bel et bien appropriée à l'analyse des objets du patrimoine ou industriels.

Elles sont en effet :

- non-destructives et non-invasives pour la plupart des matériaux, à l'exception (si on ne prend pas certaines précautions) des composés organiques sensibles à la chaleur ou aux rayonnements ionisants ;
- multi-élémentaires, jusqu'aux éléments légers et même l'hydrogène ;
- quantitatives, avec une précision de l'ordre de 1% ;
- très sensibles, et pour l'une d'entre elles (PIXE) au ppm ;
- complémentaires et susceptibles d'être mises en oeuvre simultanément ;
- offrant la possibilité de mises en oeuvre sous atmosphère (faisceau extrait) et donc directement sur les objets de musées.

Signalons toutefois les limitations suivantes :

- l'analyse ne concerne que la partie superficielle du matériau (10 à 100 micromètres au plus) en analyses conventionnelles et risque donc de ne pas être représentative du cœur en cas d'altération très importante de la surface ;
- l'analyse est quasi strictement élémentaire et ne donne dès lors aucune ou très peu d'informations sur l'état chimique des éléments ;
- l'analyse des matériaux isolants peut être délicate à cause de l'accumulation des charges électriques dans une enceinte sous vide.





## Deuxième partie

# Facilités dédiées aux techniques IBA à l'Université de Liège



# Introduction

L’Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie de Liège est actif dans le domaine des faisceaux d’ions depuis sa création dans les années 1970 par l’utilisation de plusieurs accélérateurs de type linéaire et d’un cyclotron. Cette partie a pour objectif de montrer, d’une part l’évolution des facilités associées au cyclotron, et d’autre part de présenter au lecteur les différents équipements qui ont été utilisés et développés dans le cadre de la réalisation de cette thèse.



# Chapitre 1

## Le Cyclotron CGR-MeV 520

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Les lignes de transport du cyclotron CGR-MeV 520 de Liège . . . . .</b>	<b>69</b>
<b>1.2</b>	<b>Le transport du faisceau dans la ligne de transport direct - Voie 5 . . . . .</b>	<b>72</b>
<b>1.3</b>	<b>La zone de travail de la ligne de transport direct - Voie 5 . . . . .</b>	<b>72</b>
1.3.1	L' ancien dispositif . . . . .	72
1.3.2	Le dispositif actuel . . . . .	77
1.3.3	Les limitations de la ligne de transport directe . . . . .	81
<b>1.4</b>	<b>Le transport du faisceau dans la ligne de transport analysé - Voie 8 . . . . .</b>	<b>82</b>
1.4.1	Amélioration de la résolution en énergie du faisceau . . . . .	84
1.4.2	Système du vide . . . . .	85
<b>1.5</b>	<b>La zone de travail de la ligne de transport analysé - Voie 8 . . . . .</b>	<b>86</b>
1.5.1	La chambre sous vide "Standard" . . . . .	86
1.5.2	La zone de travail extraite à l'air libre . . . . .	92
1.5.3	Modernisation du système d'acquisition électronique . . . . .	96
1.5.4	Le système "Time Of Flight" . . . . .	98

---

L'université de Liège a implanté, en 1972, un cyclotron isochrone de faibles dimensions au sein de l' Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie. Le cyclotron, construit par CGR-MeV, était initialement prévu pour la production de radio-isotopes traceurs à des fins médicales. Il s'agit d'un cyclotron du type 520 AVF (Azimutally Varying Field) avec

Particule	Valeur d'énergie garantie (MeV)
Proton	2,5 à 20
$\alpha$	6 à 24

TABLE 1.1 – Energies pouvant être produites par le cyclotron.

lequel il est possible de faire varier l'énergie des particules lorsque celle-ci devient relativiste. Le plan des installations de l'époque, à la figure 1.1 montre que l'institut possédait de nombreuses lignes de transport et un système d'analyse de faisceaux comparable aux systèmes déjà existants dans d'autres laboratoires, comme ceux de Berkeley et de Bonn. Ce système d'analyse a été abandonné quelques années plus tard à cause des grandes difficultés survenues lors des réglages et des calibrations. La plupart des lignes de transport ont alors été démontées ne laissant sur place que les aimants rendus intransportables de par leurs tailles imposantes [9].

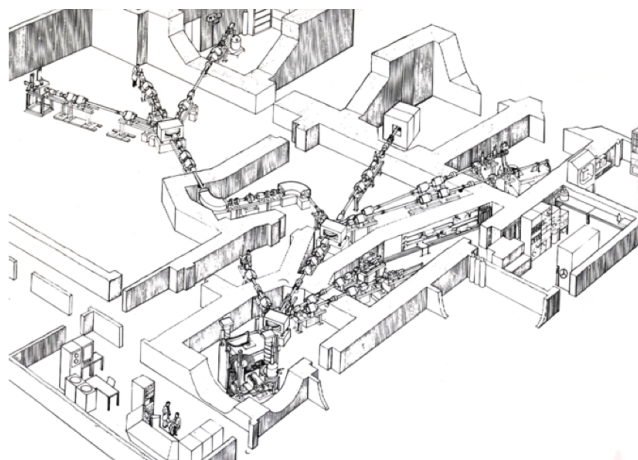


FIGURE 1.1 – Schéma des installations aux premiers jours.

Le tableau 1.1 reprend les énergies que le cyclotron peut produire pour les deux types de particules utilisées lors des applications récentes.

L'implantation d'un nouveau cyclotron dédié aux applications médicales dans un autre laboratoire de l'université a été un premier tournant dans l'histoire du cyclotron. De nouvelles applications analytiques ainsi que de

nouvelles méthodes d'investigations ou d'interactions avec la matière ont pu ainsi voir le jour. Actuellement, le temps de travail sur le cyclotron est partagé entre les applications industrielles (TLA-Thin Layer Activation et Ultra-TLA) et les applications archéométriques [36].

En effet, deux lignes de transport dédiées intégralement à l'Archéométrie ont été remontées au sein de l'institut, comme le montre la figure 1.2. La voie 5, c'est-à-dire la ligne de transport direct, est en activité depuis 1998. Par contre, la voie 8 (ou la ligne de transport analysé) est plus récente [37].

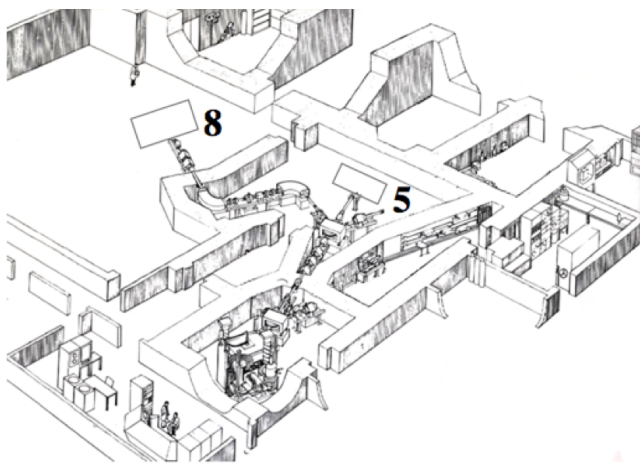


FIGURE 1.2 – Schéma des installations actuelles.

## 1.1 Les lignes de transport du cyclotron CGR-MeV 520 de Liège

Le faisceau de particules chargées et accélérées produit par le cyclotron est transporté jusqu'aux deux zones de travail au travers des lignes de transport jusqu'à l'échantillon-cible (figure 1.3).

Le faisceau passe tout d'abord aux travers de trois quadrupôles, Q1.0, Q2.0 et Q3.0, qui permettent de focaliser le faisceau précisément. Ensuite le faisceau est dévié par l'électro-aimant SW1 d'un angle de  $2^\circ$  avant de passer à travers un collimateur en aluminium, percé d'un trou de 10 mm de diamètre,

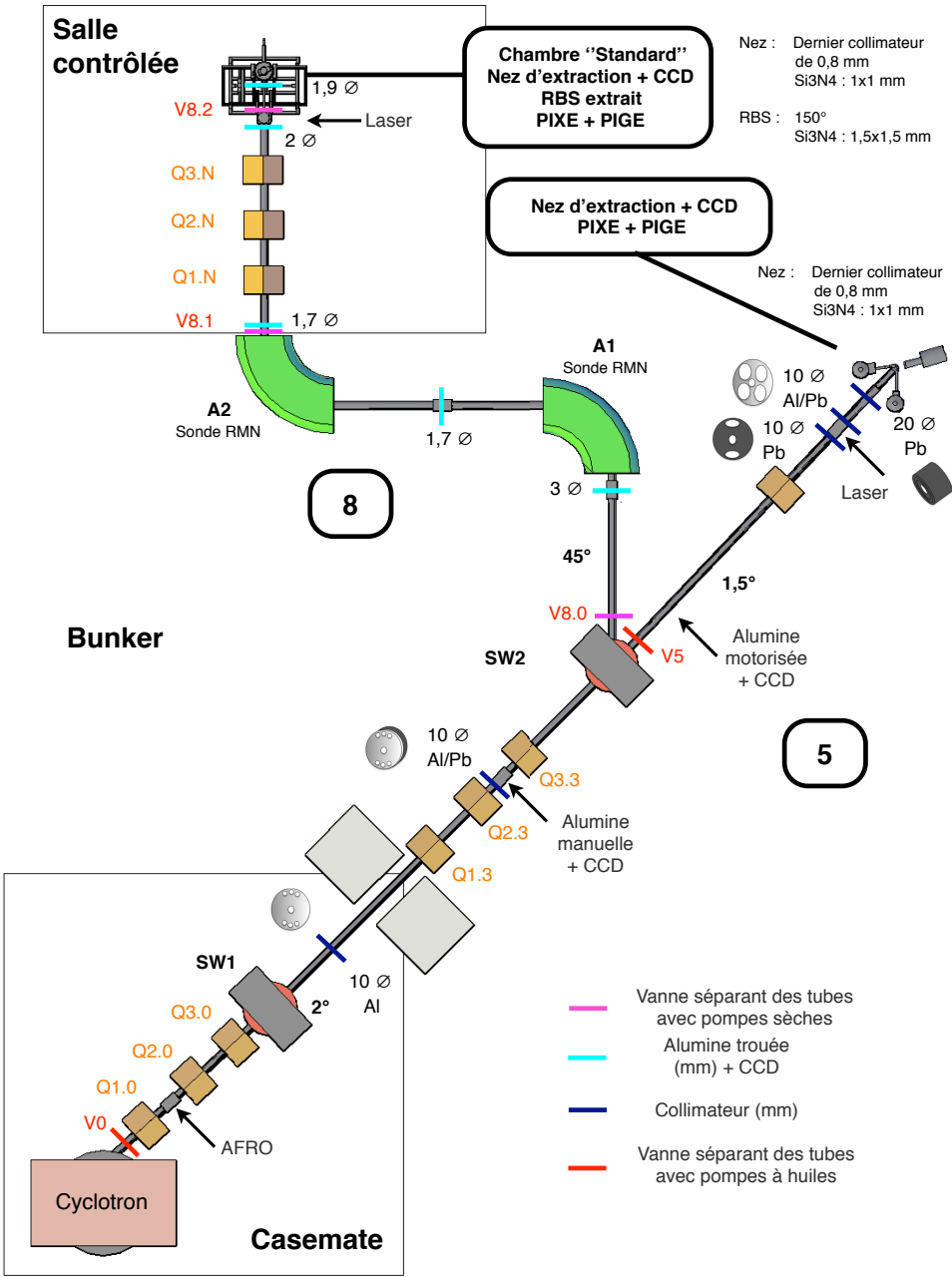


FIGURE 1.3 – Schéma des installations actuelles.



disposé entre l'aimant SW1 et le bouchon d'isolation amovible inséré dans le mur de béton. Le faisceau quitte alors la casemate pour pénétrer dans le bunker où il passe au travers de deux nouveaux quadripôles, Q1.3 et Q2.3. Le faisceau est ensuite collimaté par un double collimateur aluminium et plomb (séparés d'un centimètre), percé d'un trou de 10 mm de diamètre, localisé à l'entrée d'une boîte standard disposée entre le mur et le deuxième aimant de déviation SW2. Celui-ci a la particularité d'être doublé d'un collimateur en plomb afin de limiter les émissions issues de possibles réactions nucléaires. De plus, la boîte standard possède un bras mécanique qui permet d'introduire une alumine ( $Al_2O_3$ ) manuellement. La luminescence produite sur le quartz par le passage des particules du faisceau est filmée par une caméra CCD, lorsque le quartz est centré dans la ligne, et permet de visualiser directement et en temps réel la forme et la position du faisceau et ainsi d'en faciliter son guidage.

Après, le faisceau traverse un autre quadripôle, Q3.3. Après ce tronçon commun, les deux lignes (5 et 8) se séparent au niveau de l'électro-aimant de déviation SW2. Les aiguillages SW1 et SW2 sont composés d'un aimant de forme circulaire entouré d'un noyau de fer doux rectangulaire. Ils ont pour rôle de dévier le faisceau d'un angle plus ou moins important en fonction du courant qui leur est imposé grâce à l'apparition d'un champ magnétique uniforme. Deux angles de déviation, correspondant aux deux lignes de transport de faisceaux, ont été envisagés au sein du laboratoire pour l'électro-aimant SW2.

La présence des nombreux collimateurs s'explique par plusieurs raisons :

- limiter la dispersion spatiale et en énergie du faisceau ;
- au vu des énergies relativement importantes accessibles par le cyclotron, de nombreuses réactions nucléaires peuvent voir le jour dans la ligne de transport. Les résidus et les émissions secondaires de ces réactions nucléaires, qui contribuent aux bruits de fond radiatifs et neutroniques du bunker, peuvent dégrader les limites de détections lors de certaines expériences nécessitant un bruit de fond très propre. Pour limiter ces effets problématiques et améliorer la radioprotection des utilisateurs, plusieurs collimateurs ont dès lors été positionnés le long de la ligne de transport.

La figure 1.3 reprend les différentes positions et formes des collimateurs. Les orifices inférieurs et supérieurs, et ce pour tous les collimateurs, servent à faciliter la mise sous vide des tubes.

## 1.2 Le transport du faisceau dans la ligne de transport direct - Voie 5

Le faisceau qui a d'abord été dévié d'un angle de  $2^\circ$  par le premier électro-aimant SW1 va être re-dévié par l'électro-aimant SW2 d'un angle presque nul de  $1,5^\circ$ . Cette configuration quasi rectiligne est utilisée pour la voie 5. La zone de travail se trouve alors à la fin de la ligne de transport qui aura été déviée de  $3,5^\circ$  par rapport à la sortie du cyclotron. Dans la pratique, l'électro-aimant est alimenté pour permettre des corrections fines de la position du faisceau et ainsi l'aligner parfaitement avec la suite de la ligne de transport et la zone de travail. De plus, une alumine blanche amovible motorisée couplée à une caméra CCD a été placée dans la ligne de transport afin de guider plus aisément le faisceau. Avant d'être extrait à l'air, le faisceau doit traverser plusieurs collimateurs. Le premier collimateur en plomb, percé d'un trou de 10 mm de diamètre, est positionné à l'entrée d'une boîte standard nichant un laser. A la sortie de cette boîte standard, se trouve un collimateur en aluminium doublé de plomb percé d'un trou de 10 mm de diamètre. Finalement, le faisceau traverse un collimateur épais de plusieurs centimètres de plomb percé d'un trou de 20 mm de diamètre.

## 1.3 La zone de travail de la ligne de transport direct - Voie 5

### 1.3.1 L'ancien dispositif

Les articles [38] et [39] publiés en 1998 et en 2002 par G. Weber décrivent l'état du premier dispositif d'analyse extrait par faisceaux d'ions de l'IPNAS situé à la fin de la ligne de transport direct. Le schéma de la figure 1.4 et la figure 1.5 reprennent les différents éléments essentiels de la zone de travail de cette voie 5.

- L'extraction

La zone de travail de la voie 5 est sous atmosphère. En effet, la taille imposante de certaines oeuvres d'art ne permet pas de les positionner dans une enceinte sous vide. De plus, devant la fragilité de ces oeuvres, il est souvent même impensable d'envisager de les mettre sous vide quelques soient leurs tailles. Le transport de faisceau se fait sous vide et il faut donc passer par un système d'extraction à l'air en

fin de ligne afin de permettre l'interaction entre les faisceaux et la matière. Ce dispositif est généralement appelé le “nez d'extraction”. Après être passé au travers d'un collimateur circulaire de 3 mm de diamètre, le faisceau va être extrait grâce à la présence d'une fenêtre d'extraction en nickel d'une épaisseur de 2,5 microns. Cette seule fenêtre est capable de tenir des différences de pressions importantes ( $10^{-6}$  mbar par rapport à 1 atm). L'importance de cette épaisseur est primordiale. En effet, lors de son passage dans la fenêtre d'extraction, le faisceau va perdre une partie de son énergie (plus importante si la fenêtre est plus épaisse). De plus, il va subir une dispersion angulaire qui va provoquer un agrandissement de la taille du faisceau et une augmentation de la dispersion de son énergie. Le faisceau extrait est alors encore collimaté par un trou de 6 mm de diamètre et il ne lui reste plus qu'à parcourir les quelques centimètres d'air (2-3 cm) qui le sépare de l'échantillon cible. La présence d'air entre la fenêtre d'extraction et la cible va avoir le même effet que la fenêtre.

Des simulations réalisées sur le programme “TRIM” issu de la suite “SRIM” permettent de se rendre compte de l'effet de l'épaisseur de la fenêtre d'extraction et de l'influence du gaz ambiant sur le faisceau de particules [40]. Le passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV est ainsi simulé pour différentes configurations (figures 1.6 à 1.9) :

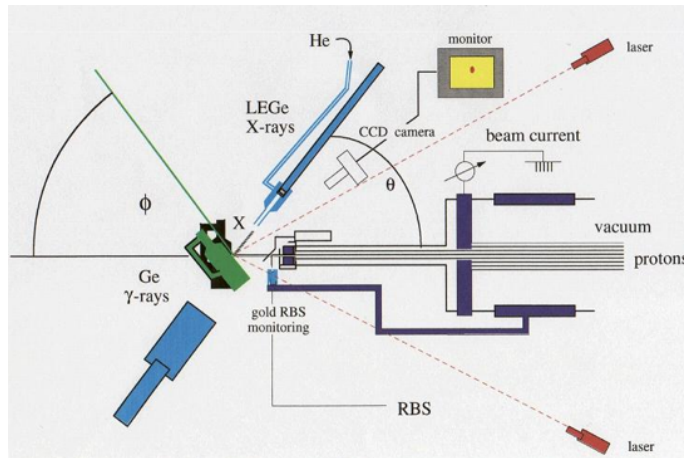


FIGURE 1.4 – La zone de travail de la ligne de transport directe en 2002 [39].

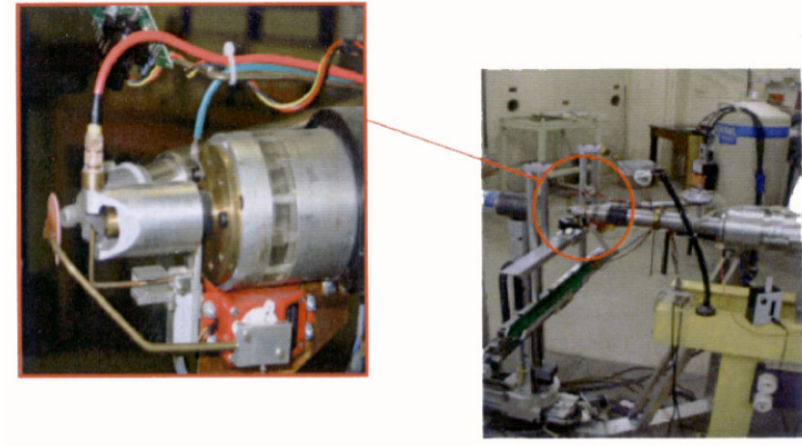


FIGURE 1.5 – Le nez d'extraction de la zone de travail de la ligne de transport directe en 2002.

- 2,5  $\mu\text{m}$  de Ni et 5 cm d'air,
- 2,5  $\mu\text{m}$  de Ni et 5 cm d'hélium,
- 100 nm de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  et 5 cm d'air,
- 100 nm de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  et 5 cm d'hélium.

Cette simulation met en exergue l'importance d'utiliser une fenêtre d'extraction la plus fine possible accompagnée d'une atmosphère d'hélium. Les variations de la dimension du faisceau sont importantes, allant de 1 mm de rayon dans le meilleur des cas à 7 mm de rayon dans le cas le plus critique.

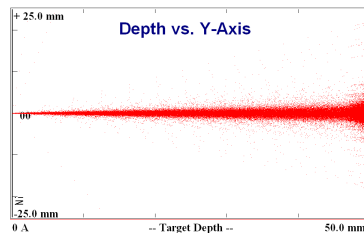


FIGURE 1.6 – Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 2,5 microns de nickel et de 5 cm d'air.

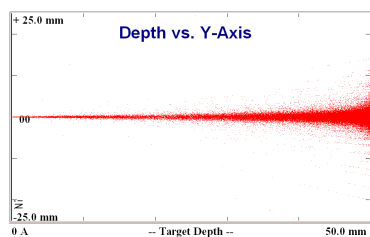


FIGURE 1.7 – Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 2,5 microns de nickel et de 5 cm d'hélium.

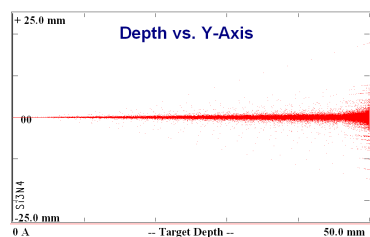


FIGURE 1.8 – Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 100 nm de nitrure de silicium et de 5 cm d'air.

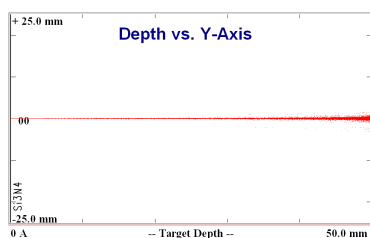


FIGURE 1.9 – Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 100 nm de nitrure de silicium et de 5 cm d'hélium.

- Le positionnement de l'échantillon

A sa sortie à l'air libre, en fin de parcours, le faisceau d'ions a une taille millimétrique. Le porte-échantillon sert alors à amener la partie voulue de l'échantillon-cible à analyser au point d'analyse. Ce point d'analyse sera défini plus tard.

Un dispositif de positionnement a été spécialement conçu et réalisé par les mécaniciens et les techniciens de l'IPNAS. Le déplacement de l'échantillon est assuré par le mouvement de cinq moteurs directement commandés à partir d'un pupitre situé à proximité immédiate de la zone de travail. Il en résulte la possibilité de déplacer l'échantillon dans les trois axes (X,Y,Z), mais également d'opérer une rotation autour de l'axe Z. De plus, il est possible d'effectuer un balayage automatique selon la direction de l'axe des X avec des pas de l'ordre de 30 microns. Le point d'analyse est défini géométriquement par l'intersection de deux lasers placés de part et d'autre de la ligne de transport du faisceau. Il est choisi de manière à limiter le plus possible la distance entre la fenêtre d'extraction et le point d'impact du faisceau avec l'échantillon-cible lors des analyses, en fonction de la géométrie de la zone de travail. L'utilisation d'une céramique luminescente sous faisceau permet de plus de s'assurer que le point d'impact du faisceau et l'intersection des deux lasers coïncident bien. En effet, la céramique utilisée a la propriété d'émettre une lumière dans le domaine du visible lorsqu'elle est bombardée par le faisceau. Un très faible courant, de l'ordre du dixième de nanoampère suffit. Une caméra CCD permet également de visualiser sur un moniteur les différents points afin de les superposer au mieux et de choisir la zone de l'objet à analyser.

- La détection

La zone de travail de la ligne 5 telle qu'elle est présentée en 1998, n'est composée que de deux détecteurs. Le détecteur utilisé pour la PIXE est un détecteur semi-conducteur de type Ultra-LEGe (Low Energy Germanium) GUL0035P de chez Canberra [41]. La possibilité d'ajouter un flux d'hélium entre la fenêtre d'entrée du détecteur (1/3 mm en béryllium) permet de diminuer la perte d'intensité des rayons X de faible énergie qui serait causée par la présence d'air. Le second détecteur, Xtra-HPGe (Hyper-Pure Germanium) GX3018 de chez Canberra, est utilisé pour la technique PIGE. Les chaînes d'acquisitions,

similaires pour les deux détecteurs, sont composées des éléments électroniques traditionnels : pré-amplificateur, amplificateur, convertisseur analogique-digital, analyseur multi-canaux Canberra S35 et un ordinateur.

- La mesure de la dose

Les spectres acquis doivent être re-normalisés pour pouvoir traiter et comparer les données acquises sur un ou plusieurs échantillons-cibles. Pour ce faire, il faut que la dose de particules reçue par les différents échantillons soit la même. Une mesure du courant est donc nécessaire pour quantifier cette dose. Cette mesure est opérée directement sur le faisceau extrait par l'intermédiaire d'un "chopper" rotatif qui intercepte le faisceau de manière intermittente. Le chopper est en position "active" pendant environ 10% du temps de mesure total et son déplacement de position "active" à "non-active" est assuré par un système pneumatique alimenté en courant alternatif. Le chopper est composé d'une tige en plastique recouverte d'or. Les particules du faisceau rétro-diffusées par la couche d'or du chopper sont détectées et comptées (la technique utilisée est évidemment la RBS). Le nombre de particules incidentes rétro-diffusées par le chopper est en relation directe et linéaire avec la dose. Cette relation a fait l'objet d'une attention particulière lors du mémoire de Julie Absil [42]. Cette linéarité nous permet d'être sûr d'obtenir une dose similaire lors des différentes expériences et analyses réalisées. Dans la pratique, la charge est transmise à un intégrateur de courant relié à une échelle de comptage. A une certaine valeur maximale de comptage, choisie préalablement par l'utilisateur, l'électronique va faire tomber la vanne permettant au faisceau de passer dans la ligne de transport. Ce dispositif permet d'avoir des doses similaires et ainsi de réaliser des expériences reproductibles. Cependant le dispositif perturbe notablement les analyses. En effet, en plus d'intercepter le faisceau et donc de l'empêcher d'atteindre l'échantillon-cible, ce qui ne fait que prolonger le temps d'acquisition, le va-et-vient du chopper perturbe le flux d'hélium.

### 1.3.2 Le dispositif actuel

Au fil du temps, plusieurs améliorations ont été apportées à la zone de travail pour permettre à l'utilisateur de travailler dans de meilleures condi-

tions et d'obtenir des résultats plus précis et de meilleure qualité.

- L'extraction

Le nez d'extraction a été complètement revu et corrigé en 2006. Les plans du nouveau nez ont été publiés dans mon mémoire en 2007 [43] et également dans celui de René Delhalle [44] en 2009. Les descriptions des différentes pièces et les différentes améliorations y sont largement discutées (figure 1.10).

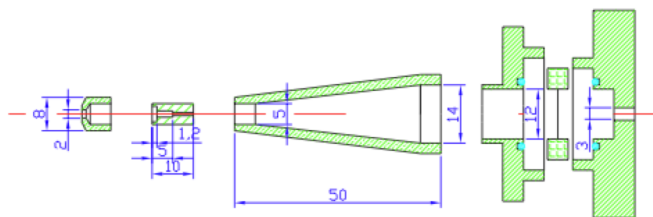


FIGURE 1.10 – Plan du nez d'extraction à l'échelle millimétrique.

Il est cependant important de noter les trois modifications les plus importantes.

- Les trous d'entrée et de sortie ont un diamètre de 1,7 mm, même si un dernier collimateur de 0,8 mm est positionné devant la fenêtre d'extraction.
- La fenêtre d'extraction de 2,5 microns de nickel a été remplacée par une fenêtre plus fine en nitrure de silicium ( $Si_3N_4$ ). Les dimensions exactes sont de 1x1 mm sur une épaisseur de 100 nm. Cette faible épaisseur permet de diminuer l'interaction entre le faisceau de particules incidentes et la fenêtre. Il en résulte une perte d'énergie et une dispersion spatiale moins importante. Des simulations ont été réalisées et présentées précédemment afin de visualiser la différence entre les deux fenêtres d'extraction.
- La troisième modification importante est l'intégration de la mesure de la dose directement à l'intérieur du nez d'extraction. Le chopper a pu ainsi être supprimé. Cela induit un gain de temps, de stabilité du flux d'hélium et d'espace pour positionner les détecteurs.



Le système de mesure de dose est basé sur la rétro-diffusion des particules incidentes du faisceau par une couche d'or en surface du dernier collimateur avant la fenêtre d'extraction. Le principe est représenté par le schéma de la figure 1.11 tiré du mémoire de René Delhalle [44]. Les particules incidentes rétro-diffusées sont détectées grâce à un détecteur PIPS placé à l'intérieur du nez d'extraction. Le nombre de particule détectées est proportionnel au nombre de particules qui vont interagir avec l'échantillon-cible. Ce nombre est donc proportionnel à la dose reçue par la cible. Le choix s'est porté sur un détecteur annulaire à barrière de surface "Canberra" de  $100\text{ mm}^2$  de surface active, de 300 microns d'épaisseur et de 17 keV de résolution : ANFD100-17-300RM (+70V). En pratique, un intégrateur est utilisé à la suite d'un discriminateur pour compter le nombre de particules comprises entre deux énergies fixées par l'utilisateur. Les deux énergies sont établies sur base de l'énergie du faisceau de particules incidentes. La borne supérieure correspond approximativement à l'énergie du faisceau, en raison du facteur cinématique élevé de l'or. La borne inférieure est choisie de manière à comptabiliser toutes les particules qui contribuent à l'apparition du pic de l'or sur le spectre RBS. Si cette méthode est très précise pour les expériences réalisées avec un faisceau de même énergie, une limitation apparaît dans le cas d'expériences où plusieurs énergies de faisceaux sont nécessaires. En effet, il convient pour chaque faisceau d'énergie différente de modifier les bornes du discriminateur et de tenir compte des différentes sections efficaces Rutherford. De ce fait, les manipulations sont fortement moins reproductibles. Pour palier cet inconvénient, un deuxième dispositif basé sur l'intégration du courant sur le nez d'extraction est utilisé. Ce système est indépendant de l'énergie du faisceau mais il est cependant moins précis.

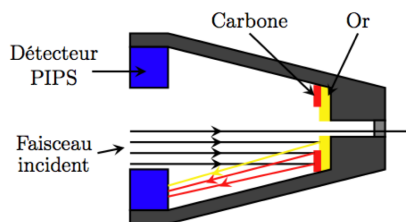


FIGURE 1.11 – Principe de la mesure de dose incluse dans le nez d'extraction.

- Le positionnement de l'échantillon.

Si le porte-échantillon n'a pas subi de modification, la manière de définir le point d'analyse, elle, a changé. Un laser a été introduit dans la ligne de transport. Grâce à un système aimanté, il est capable de s'insérer dans l'axe du faisceau lorsque il est sous tension. L'intersection avec cet axe se fait désormais avec l'axe d'une caméra CCD positionnée et centrée sur la face supérieure du nez d'extraction. Le point d'impact est dès lors visualisé et déterminé directement sur le moniteur. De plus, le changement de nez d'extraction a permis de rapprocher le point d'analyse à 1,3 cm de la fenêtre d'extraction.

- La détection.

Un deuxième détecteur X Si(Li) Sirius de 10 mm<sup>2</sup> de chez "e2V" (anciennement "Gresham") [45] a été ajouté à la géométrie de la zone de travail. Elle compte désormais deux détecteurs X, chacun à un angle de 40° par rapport au faisceau. Le nouveau détecteur dédié à la détection de la matrice des échantillons-cibles utilise un flux d'hélium entre sa fenêtre en polymère (AP3.7 "Moxtek" [46]) et la cible. Il possède une résolution d'environ 135 eV (mesurée avec une source de <sup>55</sup>Fe). Un dispositif de protection conçu et développé au laboratoire est placé sur la canne du détecteur. Le détecteur est, à cause de sa fenêtre très fine (support de 380 nm trouée à 77%) et composée d'éléments très légers, sensible d'une part à la lumière et d'autre part aux particules incidentes rétro-diffusées par la cible qui pourraient endommager le cristal. Le dispositif comprend une feuille d'un micron de carbone pour supprimer la lumière dans le domaine du visible. Il comprend également un déflecteur pour dévier les particules incidentes rétro-diffusées par la cible. Le déflecteur a fait l'objet d'une étude décrite dans le chapitre suivant. L'ancien détecteur est dédié à la détection des traces présentes dans la cible, au vu de sa moins bonne résolution (160 eV). Le détecteur dédié à la technique PIGE est quant à lui inchangé.

Une troisième technique a été ajoutée sur cette ligne de transport directe. Il s'agit de l'IBIL. Pour ce faire, une fibre optique est placée sur la surface supérieure du nez d'extraction afin de collecter les photons émis dans le domaine UV-Visible par l'échantillon-cible. La fibre optique est placée de manière à être focalisée sur le point d'analyse.

La figure 1.12 reprend le schéma de la géométrie du dispositif actuel.

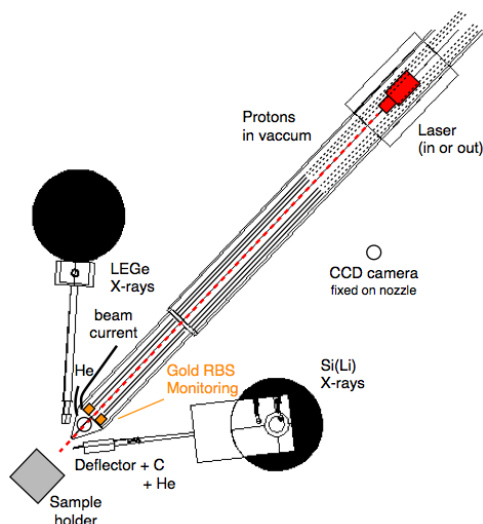


FIGURE 1.12 – Schéma de la géométrie du dispositif actuel.

### 1.3.3 Les limitations de la ligne de transport directe

La ligne de transport directe, voie 5, est fréquemment utilisée pour l'étude de nombreux objets du patrimoine à l'aide des méthodes PIXE, PIGE et IBIL. Cependant, elle fait l'objet de quelques limitations.

En 2007, la résolution spatiale du faisceau a été mesurée après extraction au niveau du point d'analyse. Les résultats obtenus par deux méthodes (lame de rasoir et caméra CCD) ont été publiés dans mon mémoire. Le faisceau avait une taille d'environ 5 mm de diamètre à 2 cm de la fenêtre d'extraction. Actuellement le diamètre du faisceau est descendu aux alentours du millimètre. La taille est donc loin des 20 microns obtenus lors de l'utilisation de micro-sondes dans d'autres laboratoires (ex : AGLAE au C2RMF (Louvre)) [47][48]. La deuxième grande limitation est l'impossibilité de pouvoir appliquer la technique RBS dans des conditions d'analyse suffisamment précises. En effet, la précision de la méthode est fortement dépendante de la résolution en énergie du faisceau incident. La résolution des pics/paliers du spectre RBS dépend de cette résolution de départ et est considérée bonne aux environs de 10-15 keV. La résolution des détecteurs est de l'ordre de 10

keV, il faut donc que la résolution du faisceau soit la plus petite possible. La résolution intrinsèque du faisceau a été mesurée par Grégoire Chêne lors de son rapport de stage de Master 2 en 2005 [49]. Il a utilisé une résonance naturelle de largeur étroite (0,34 keV) de la réaction nucléaire  $S(p,p' \gamma)S$  du soufre à 3379 keV. Elle est d'environ 36 keV [50], c'est-à-dire trop importante pour la réalisation d'expériences en RBS qui nécessite une résolution en énergie de seulement quelques keV.

A la même période, pour répondre à toutes ces limitations, le laboratoire a décidé de construire une nouvelle ligne de transport : la voie 8.

## 1.4 Le transport du faisceau dans la ligne de transport analysé - Voie 8

Le deuxième angle de déviation induit par l'électro-aimant SW2 est un angle, non nul, de  $45^\circ$ . Pour acheminer le faisceau d'ions vers la ligne 8, un champ magnétique doit alors être créé au sein de l'électro-aimant de déviation. La valeur du champ magnétique nécessaire à cette déviation est donnée par la relation :

$$B = \frac{B_R}{R_a} tg \frac{\phi}{2} \quad (1.1)$$

où  $B_R = \frac{\sqrt{2mE}}{q}$  est la rigidité magnétique de la particule et  $R_a$  est le rayon de courbure de l'aimant (260 mm). Dans le cas de protons de 3 MeV, le champ magnétique vaut  $3,973 \cdot 10^{-4}$  T.

Le faisceau arrive alors aux électro-aimants suivants. Les deux électro-aimants, A1 et A2 doivent être considérés ensemble. Cette paire d'électro-aimants est appelée le doublet achromatique ou l'analyse. Ce doublet joue un double rôle sur le transport du faisceau d'ions :

- les deux électro-aimants "Berkeley" placés en sens inverse dévient le faisceau d'ions d'un angle de  $90^\circ$  chacun. Ils permettent ainsi de corriger les aberrations qu'engendreraient chacun des deux aimants s'ils étaient pris séparément. Pour ce faire, ils sont placés de telle manière que le foyer image du premier électro-aimant A1 corresponde au foyer objet du second électro-aimant A2. De plus, vu leurs tailles importantes, même s'ils ont été usinés à l'identique, il perdure de légères différences qui peuvent modifier le transport du faisceau. Une alimentation de correction a été installée et calibrée afin de compenser au mieux les variations entre les deux électro-aimants ;

- le doublet achromatique permet également de diminuer la dispersion en énergie. En effet, il est connu par la relation 1.1 que l'angle de déviation dépend de l'énergie des particules, donc, si un collimateur est placé à la sortie de l'électro-aimant A1, les particules qui ont trop ou trop peu d'énergie seront arrêtées par celui-ci. En jouant sur la valeur du champ magnétique, il est possible de choisir finement et précisément l'énergie du faisceau. Un champ de  $2.17 \cdot 10^{-4}$  T est nécessaire pour dévier des protons de 3 MeV de  $90^\circ$  avec des électro-aimants de ce type ( $R_C = 1148$  mm). Dans la pratique, l'électro-aimant A1 assure la sélection en énergie et influe donc en grande partie sur la résolution en énergie du faisceau.

Pour pouvoir analyser des objets, il faut que la taille du faisceau soit plus petite que la taille de la zone de l'échantillon-cible à étudier. Il est nécessaire d'obtenir un faisceau de taille au moins millimétrique. De ce fait, la collimation et la re-focalisation sont inévitables. Les deux opérations ont toutefois des influences assez différentes sur le faisceau d'ions. Effectivement, une forte collimation du faisceau ne fait que diminuer, par simple perte, le courant reçu par l'échantillon-cible. Par contre, une re-focalisation par l'intermédiaire de lentilles magnétiques (par exemple un quadrupôle) tend à resserrer spatialement des particules d'énergies différentes qui avaient été séparées par les différents systèmes de déviation. Ceci a pour effet immédiat de ré-augmenter la dispersion en énergie. Dans la pratique, il faut trouver un compromis judicieux qui permet d'utiliser un minimum de systèmes de re-focalisation du faisceau et la taille des collimateurs pour avoir suffisamment de courant d'analyse.

Trois collimateurs sont disposés le long du parcours du faisceau afin d'en diminuer la taille, tout en gardant un flux de particules suffisant. Les collimateurs sont des disques d'alumine ( $Al_2O_3$ ), recouverts d'une fine couche conductrice de carbone afin d'évacuer les charges, percés en leur centre d'un trou de quelques millimètres de diamètre. Ils permettent également de visualiser le faisceau au moyen de caméras CCD, l'alumine ayant la propriété d'émettre de la lumière visible sous l'impact de protons ou de particules  $\alpha$ . La visualisation du faisceau facilite le guidage de celui-ci. Les collimateurs sont placés : avant le premier électro-aimant monochromateur A1 (3 mm de diamètre), à mi-distance du doublet achromatique (1,7 mm de large sur 4 mm de haut) et à la sortie du second électro-aimant monochromateur A2 (1,7 mm de diamètre). Ils absorbent une partie des particules destinées à l'échantillon analysé, ce qui est sans conséquence étant donné que le flux de

particules produit par le cyclotron est bien supérieur au flux nécessaire en sortie de ligne.

Après le passage dans le doublet achromatique, le faisceau est focalisé au moyen de trois lentilles magnétiques. Les quadrupôles ont été centrés sur la ligne de transport et les protons ou les particules  $\alpha$  les traversent en leur centre. Trois quadrupôles sont nécessaires car chaque lentille magnétique focalise le faisceau dans une direction (l'axe  $x$  sur la figure 1.13) mais le disperse dans la direction perpendiculaire (l'axe  $y$  sur la figure 1.13). En plaçant plusieurs système de focalisation de ce type, que l'on fait tourner d'un angle de  $90^\circ$  les uns par rapport aux autres, on parvient à focaliser le faisceau dans les deux directions  $x$  et  $y$ . Le faisceau collimaté et focalisé arrive alors à la zone de travail de la ligne de transport analysée (8). Cette zone de travail a fait l'objet de nombreuses améliorations qui sont explicitées dans la section suivante.

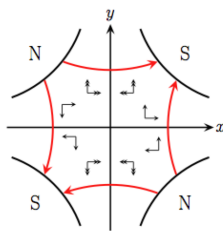


FIGURE 1.13 – Quadrupôle magnétique. Les flèches rouges représentent les lignes de champ, les flèches simples, le sens des composantes ( $x, y$ ) du champ magnétique et les flèches doubles, les forces appliquées sur des particules chargées positivement.

#### 1.4.1 Amélioration de la résolution en énergie du faisceau

La résolution en énergie du faisceau a été mesurée, de manière identique que pour la voie 5, dans une chambre sous vide à la fin de la ligne de transport analysée. La résolution est passée de 36 keV à 2 keV. Cette amélioration importante de la résolution en énergie permet dorénavant d'obtenir des spectres RBS avec une bonne résolution en masse. En effet, la voie 8 a été construite afin de combiner plusieurs méthodes IBA simultanément : PIGE, RBS et PIXE.

### 1.4.2 Système du vide

Le transport du faisceau se fait dans les lignes sous vides. Afin de pouvoir mettre à l'air l'un ou l'autre tronçon des lignes, plusieurs vannes ont été positionnées à des endroits stratégiques (figure 1.3). Chaque tronçon bénéficie de son propre système de pompage.

- Le cyclotron est isolé du reste des lignes par la vanne V0. Une cage de Faraday AFRO est placée derrière cette vanne de manière à mesurer la valeur du courant du faisceau après l'extraction hors de l'accélérateur. Cette cage de Faraday est commandée à distance et c'est elle qui descend dans la ligne de transport pour stopper le faisceau entre les analyses. Elle est située à l'intérieur de la casemate, hors de la salle contrôlée, et elle permet donc de travailler en toute sécurité aux abords des zones de travail même quand le faisceau est extrait du cyclotron. Le cyclotron jouit d'une pompe primaire Pfeiffer [51] et d'une pompe secondaire Balzers à diffusion dont la valeur du vide est reprise sur le tableau de bord de la salle de commande.
- Le tronçon entre la vanne V0 et la vanne V5 jouit d'une pompe primaire et d'une pompe secondaire Pfeiffer placées du côté de la vanne V0.
- La zone de travail de la ligne directe (5) est isolée au niveau de l'électro-aimant SW2 par la vanne V5. Le tronçon jouit d'une pompe primaire et d'une pompe secondaire Pfeiffer dont la valeur du vide est reprise sur le tableau de bord de la salle de commande.
- Le tronçon comprenant le doublet achromatique est isolé du reste de la ligne de transport analysée (8) par les vannes V8.0 et V8.1. Il jouit d'un système de pompage légèrement différent des autres tronçons. En effet, il y a une pompe primaire sèche reliée à deux pompes turbo-moléculaires sèches Pfeiffer dont la valeur du vide est également reprise sur le tableau de bord de la salle de commande.
- Le tronçon comprenant les trois quadrupôles est isolé du reste de la ligne de transport analysée (8) par les vannes V8.1 et V8.2. Il jouit d'une pompe primaire sèche reliée à une pompe turbo-moléculaire sèche Pfeiffer dont la valeur du vide est reprise sur le tableau de bord de la zone de travail en salle contrôlée.

- Finalement, la zone de travail est isolée du reste de la ligne de transport analysée (8) par la vanne V8.2. Elle jouit d'une pompe primaire sèche reliée à une pompe turbo-moléculaire sèche Pfeiffer dont la valeur du vide est également reprise sur le tableau de bord de la zone de travail en salle contrôlée.

## 1.5 La zone de travail de la ligne de transport analysé - Voie 8

La zone de travail de la ligne de transport analysée est divisée en trois parties indépendantes qui peuvent être employées pour des applications diverses.

### 1.5.1 La chambre sous vide “Standard”

Une chambre d'analyse sous vide a été disposée en amont de l'extraction pour répondre aux besoins scientifiques levés lors de la réalisation de deux thèses doctorales [52]. La conception a été guidée par trois idées principales pour permettre au final de mesurer des sections efficaces Non-Rutherford pour la méthode RBS et des sections efficaces de production de rayons X pour la méthode PIXE. L'intérêt et le pourquoi d'un tel projet sera discuté postérieurement, ce chapitre n'est qu'une description détaillée des différentes facilités du laboratoire. Pour avoir un contrôle le plus précis possible sur le courant et la dose de particules reçue par les échantillons disposés dans la chambre, celle-ci a été construite de manière similaire à une cage de Faraday. La figure 1.15 met en exergue la présence de plaques de cuivre recouvrant la totalité de la surface intérieure de la chambre. Le dispositif amovible construit sur d'autres plaques de cuivre peut être positionné dans la chambre et est relié à la surface intérieure par l'intermédiaire de plusieurs connecteurs. Ce système unique est évidemment isolé électriquement de l'extérieur de la chambre. Le dispositif amovible sert de support pour l'ensemble des éléments nécessaires aux analyses :

- Le porte-échantillon.

Selon les expériences réalisées, trois cibles épaisses ou minces peuvent être positionnées simultanément sur le porte-échantillon en aluminium.



Il n'est dès lors plus nécessaire de casser et de refaire le vide lors de chaque changement d'échantillon. Le déplacement se fait simplement par l'intermédiaire d'un servo-moteur alimenté en 5V. Outre les trois positions pré-établies, il est également possible d'effectuer des pas plus fins en mode manuel via un contrôleur.

- La caméra CCD.

Afin de visualiser aisément l'intérieur de la chambre lorsque celle-ci est sous vide, une caméra CCD associée à une lampe LED blanche a été fixée sur le support amovible.

- Les détecteurs à barrière de surface.

Pour détecter les particules rétro-diffusées par l'échantillon, quatre détecteur PIPS ont été disposés sur le dispositif amovible via des supports en aluminium. En effet, les sections efficaces dites Rutherford et Non-Rutherford sont dépendantes de l'angle de détection. Il s'agit donc ici d'accélérer les mesures, en enregistrant les données sous quatre angles simultanément. Afin de pouvoir tirer profit au mieux des mesures, les angles ont été choisis en comparaison aux angles présents dans les bases de données :  $150^\circ$ ,  $165^\circ$ ,  $170^\circ$  et  $178^\circ$ . De par la géométrie de la chambre, les trois premiers détecteurs ont été disposés à une distance commune de 11 cm. Ces détecteurs produits par "Canberra" ont une surface active de  $25 \text{ mm}^2$  pour une épaisseur de 500 microns et une résolution théorique de 10 keV : PD25-10-500-AM (+110V). Tandis que le détecteur annulaire, placé à 17 cm du point d'impact du faisceau avec la cible, a une surface active de  $300 \text{ mm}^2$  pour une épaisseur de 300 microns et une résolution théorique de 18 keV : ANPD300-18-300-RM (+60V). Les différentes "hautes" tensions des détecteurs sont fournies par un module NIM permettant d'alimenter quatre détecteurs à des tensions comprises entre 20 et 120 V et également quatre pré-amplificateurs (+12V) en façade arrière. De surcroît, le module permet de mesurer le courant de fuite du cristal du détecteur via un bouton poussoir et un affichage digital.

- Le déflecteur de particules et son support en aluminium.

Pour protéger le cristal du détecteur X utilisé pour la technique PIXE,

un défecteur est disposé à  $49,5^\circ$  de la cible. Le défecteur (figure 1.14) se compose de deux aimants permanents néodyme-fer de 1,2 T et d'une dimension de 40x10x5 mm espacés de 4 mm. La structure du fer doux utilisé pour confiner les lignes de champ magnétique confère une dimension circulaire de 3 cm de diamètre sur une longueur de 4 cm à l'ensemble de la pièce. Une collaboration fructueuse lors du mémoire de master de R. Delhalle a prouvé que le champ magnétique de 0,85 T au centre des deux aimants permanents permet de s'affranchir des particules chargées (des protons et des particules  $\alpha$ ) de hautes énergies accessibles grâce au cyclotron de Liège.

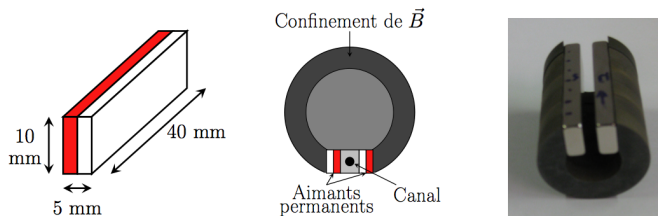


FIGURE 1.14 – Schémas et photographie du défecteur.

- Des tubes en aluminium verticaux permettent de faire le vide de part et d'autre du dispositif amovible.

La figure 1.15 reprend un schéma 3D de l'intérieur de la chambre.

D'autre part, les faces de la chambre ont été ouvertes à plusieurs endroits :

- L'entrée de faisceau.

La face arrière de la chambre a été percée pour accueillir un tube en aluminium de 10 mm de diamètre qui sert de dernier tube de transport du faisceau. Le faisceau doit pénétrer un collimateur en alumine percé d'un trou de 1,9 mm de diamètre sous contrôle d'une camera CCD. La caméra est disposée à l'atmosphère et regarde l'alumine au travers d'un verre qui permet l'étanchéité. De plus, un collimateur de 3 mm de diamètre en laiton positionné en aval, permet de polariser l'entrée de la chambre afin de repousser les électrons secondaires qui auraient été produits dans les lignes de transport et ainsi de s'affranchir de leurs

contributions à la mesure de la dose.

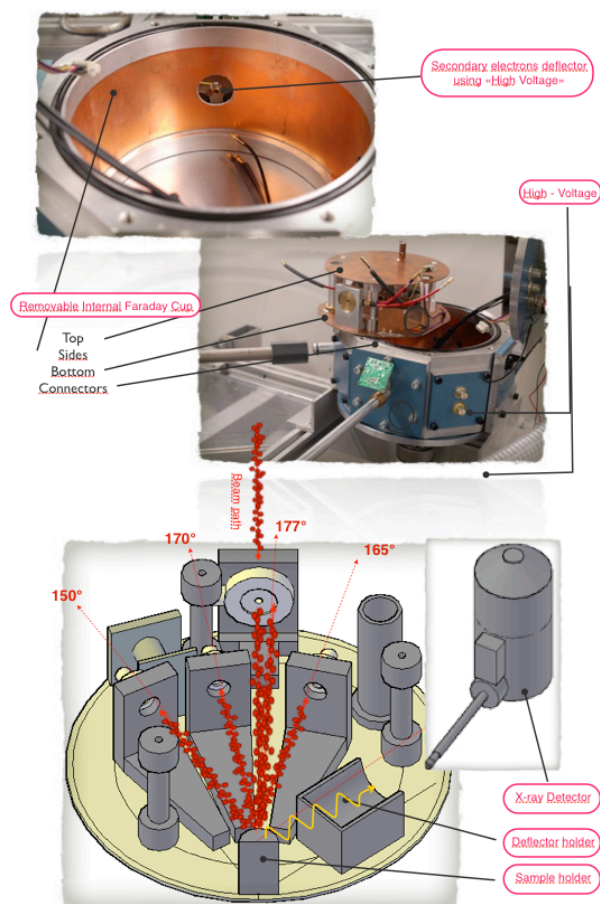


FIGURE 1.15 – Photographies et plan de la chambre sous vide dédiée aux mesures de section efficace.

- Les passages sous vides.

Comme le montre la figure 1.16, les passages sous vides permettent d'une part d'acheminer les différentes alimentations (servo-moteur, lumière, caméra CCD) et d'autre part de connecter la chaîne d'acquisition électronique des détecteurs PIPS via un connecteur "BNC" et non plus "Microdot".

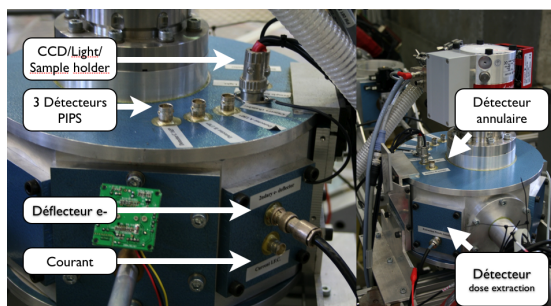


FIGURE 1.16 – Photographie des passages sous vides de la chambre.

- Le détecteur X.

La face droite de la chambre a été ouverte pour permettre l'introduction du détecteur Si(Li) e2V dans la chambre. La canne de 13 mm de diamètre qui peut supporter le vide est isolée de l'atmosphère grâce à des o-rings. Le cristal du détecteur peut ainsi être amené au plus près du déflecteur positionné, pour rappel, à un angle de  $49,5^\circ$ .

- La pompe secondaire.

La pompe secondaire est directement fixée sur la face supérieure de la chambre pour faciliter et accélérer le pompage et la mise sous vide.

- La sortie de faisceau.

La face avant a également été ouverte pour permettre au faisceau de continuer son parcours au-delà de la chambre. Il est cependant possible de placer un fond épais provisoire en cuivre pour arrêter le faisceau à l'intérieur de la chambre.

Pour pouvoir compenser les légères variations de trajectoires des particules accélérées des différents faisceaux lors de leurs transports sous vide, une table de translation (figure 1.17) a été disposée à la fin de la ligne pour supporter la chambre sous vide. Cette table est mue pas à pas via différents moteurs, contrôlés à l'aide de potars, afin d'autoriser une translation dans les deux directions perpendiculaires au faisceau de particules incident. Le système permet ainsi de centrer le faisceau dans la chambre sous vide. Pour

faciliter ce centrage, une boîte standard carrée est positionnée en amont de la chambre sous vide. Elle contient :

- une alumine rose percée en son centre d'un trou de 2 mm de diamètre et recouverte d'une fine couche de graphite pour en éliminer les charges et qui sert de collimateur et de guide du faisceau sous contrôle d'une caméra CCD ;
- un laser commandé qui peut être inséré dans l'axe du faisceau permet d'en simuler le passage afin de centrer la chambre et d'aligner les différents éléments d'analyse.

L'ensemble des collimateurs disposés tout le long de la ligne permet donc de visualiser, sur un écran via les caméras CCD, et de guider le faisceau au travers des différents éléments magnétiques et de la ligne de transport. La possibilité d'utiliser des fentes mobiles recouvertes d'alumine est à l'étude afin de pouvoir augmenter le courant du faisceau ou de resserrer la dispersion en énergie en fonction des différentes expériences à réaliser.

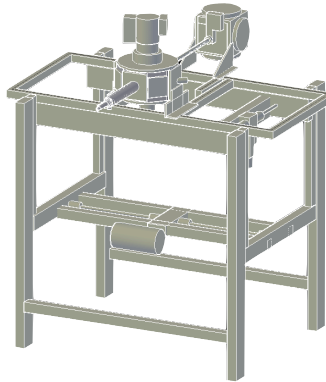


FIGURE 1.17 – Schéma de la table de translation.

### 1.5.2 La zone de travail extraite à l'air libre

La zone de travail extraite permet désormais de combiner les techniques PIXE et PIGE, comme en voie 5, mais également la technique RBS avec une résolution en énergie suffisante, de quelques keV, dans le cadre d'études d'objets du patrimoine culturel ou industriel. Le nez d'extraction apposé à la face extérieure de la chambre sous vide permet d'extraire le faisceau en l'alignant à l'aide de la table de translation. Un système comprenant à la fois le nez d'extraction et le dispositif de détection pour la méthode RBS a été conceptualisé et développé à l'institut. Il inclut un nez d'extraction dont le dispositif de mesure de la dose, reçue par l'échantillon, est basé sur l'utilisation d'un détecteur à barrière de surface, de manière similaire à celui de la voie 5. Il a été développé et adjoint à la ligne Haute Energie-Haute Résolution en prenant en compte le cahier des charges et les améliorations suivantes :

- Réduire l'encombrement de la zone de travail afin de pouvoir ultérieurement adjoindre d'autres systèmes de détection (détecteur(s) de rayons X, de rayons  $\gamma$ , de particules chargées, ...) et minimiser la distance fenêtre d'extraction-cible pour réduire au maximum la perte d'énergie et la diffusion des particules incidentes du faisceau de particules avant et après son interaction avec la cible. Les premières expériences ont été réalisées avec une distance fenêtre d'extraction-échantillon de 13,2 mm et une distance échantillon-détection RBS de 6 mm. Ces distances combinées à l'utilisation d'un flux d'hélium permettent de rencontrer les critères établis ci-dessus.
- Faciliter le montage/démontage de la fenêtre d'extraction constituée d'une membrane de  $Si_3N_4$  ultrafine d'une épaisseur de 100 nm.
- Fournir une information fiable pour la normalisation de la dose reçue par l'échantillon, en optimisant la surface de rétrodiffusion utilisée ainsi que l'angle solide de détection d'un détecteur annulaire de particules chargées. En effet, aussi bien dans le cas général de l'application en routine des techniques d'analyses par faisceau d'ions, que dans le cas plus spécifique de procédures de mesures de sections efficaces, un facteur doit impérativement être contrôlé et a dû être pris en compte lors de la conception de la chambre et du nouveau nez d'extraction de faisceau à l'air : une connaissance précise, systématique, et reproductible de la quantité de particules incidentes reçue par la cible.

- Une intégration totale des charges positives entrant dans la chambre est possible par l'utilisation d'une cage de Faraday après suppression des électrons secondaires produits par les différents collimateurs placés dans le transport de faisceau.
- La normalisation de la dose lors de l'implémentation de techniques IBA à l'air sera assurée par l'acquisition de spectres RBS de particules rétrodiffusées par un dernier collimateur de 0,8 mm de diamètre en laiton revêtu d'une couche d'argent épaisse recouverte d'une fine couche d'or, disposé juste avant la fenêtre d'extraction. Le détecteur annulaire utilisé a une surface active de  $100 \text{ mm}^2$  pour une épaisseur de 300 microns et une résolution de 17 keV : ANFD100-17-300-RM (+70 V). En sélectionnant dans ce spectre une région d'intérêt (ROI) connue et en fixant le nombre de particules rétrodiffusées par cette couche d'or à une valeur constante, on peut garantir que toutes les mesures sont bien réalisées à dose équivalente.
- Enfin une mesure indicative du courant incident sur le nez est renvoyée à l'opérateur du cyclotron afin de contrôler et optimiser la focalisation du faisceau et consécutivement maximiser le courant sur la cible et diminuer le temps d'acquisition. Ces différents dispositifs de monitoring de dose ont été contrôlés, comparés et calibrés à l'aide d'une cage de Faraday externe.

### Le nez d'extraction

Le nez d'extraction (figure 1.18) a hérité d'un aimant conique, d'une base de 7 mm et d'une épaisseur de 4 mm perforé d'un trou de 1 mm de diamètre, qui vient se localiser sur une pièce en laiton qui accueille la fenêtre d'extraction en nitrure de silicium de 1x1 mm. L'étanchéité est assurée par l'utilisation de plusieurs o-rings, tandis qu'une rondelle de plastique de 0,2 mm juxtaposée à une rondelle de carbone de 2 mm est disposée (représentées en orange sur le plan) pour assurer l'isolation galvanique de la pièce. Le faisceau, qui a déjà traversé le détecteur de dose annulaire et le collimateur de 0,8 mm, passe dès lors au travers de la fenêtre d'extraction de 100 nm pour être extrait à l'air. Un flux d'hélium peut également être introduit en fin de trajet.

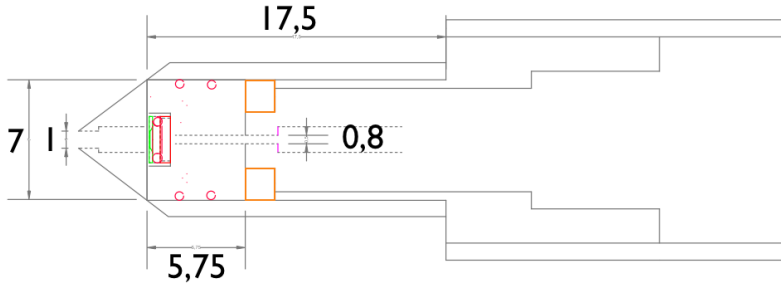


FIGURE 1.18 – Plan du nez d'extraction.

### Le système de détection RBS extrait

Le système de détection RBS extrait est basé sur l'utilisation d'un détecteur à barrière de surface. Sa surface active est de  $50 \text{ mm}^2$  d'épaisseur de 300 microns et de 11 keV de résolution : PD50-11-300-AM (+60 V). Comme le montre la figure 1.19, l'encombrement de la pièce a été réduit au maximum par la configuration conique. Par contre, afin d'augmenter l'angle solide de détection et de pouvoir obtenir des taux de comptage plus importants, une fenêtre d'extraction en nitrure de silicium plus grande de  $1,5 \times 1,5 \text{ mm}$  sur une épaisseur de 100 nm a été collée à l'extrémité du cône. Si ce montage ne permet plus d'enlever aisément la fenêtre, il a l'avantage de réduire l'encombrement. L'intérieur de la pièce est mis sous vide à l'aide des pompes de la chambre "standard" mais il dispose, au contraire du nez d'extraction, d'une vanne d'isolation manuelle.

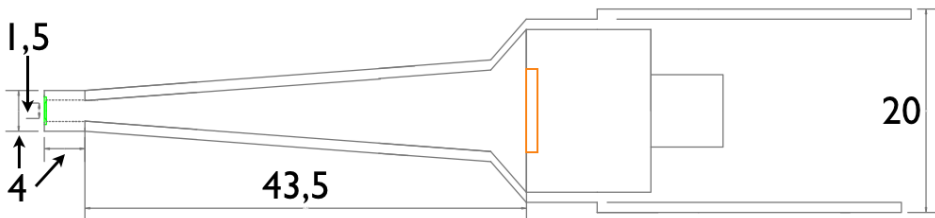


FIGURE 1.19 – Plan du système de détection RBS extrait.



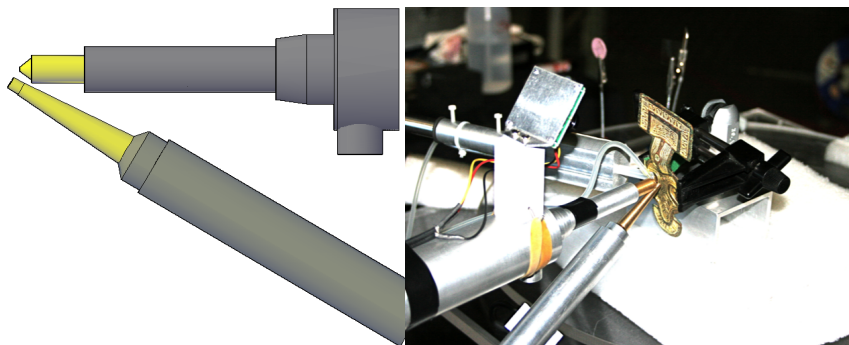


FIGURE 1.20 – Plan et photographie, pris lors d’une analyse de dorure dans le cadre du mémoire de S.Bols, de la géométrie du nez d’extraction et du système RBS extrait.

Comme le montre la figure 1.20, le dispositif de détection RBS est placé à un angle de  $150^\circ$  par rapport au nez d’extraction [31]. Un goniomètre manuel X-Y permet de le positionner au plus proche de l’échantillon. Une couronne de lampe LED a d’ailleurs été positionnée devant le détecteur à barrière de surface pour utiliser la réflexion de la lumière sur la surface du détecteur afin de positionner le système RBS. Ce système innovant a cependant des limites de précision. L’utilisation d’un motif de diffraction produit, par exemple par un cône en verre, pourrait permettre d’améliorer la précision du placement.

Si le cas de la méthode RBS est désormais discuté, trois autres détecteurs peuvent être positionnés sur la table de translation afin de collecter les rayonnements secondaires X (matrice et trace) et  $\gamma$  émis par l’échantillon lors des analyses simultanées PIXE-PIGE-RBS.

### Le porte-échantillon

Un nouveau porte-échantillon utilisant des moteurs de déplacement contrôlé à l’aide de la technologie sans fil, WIFI, est en cours de développement. Le laboratoire a déjà l’expérience de ce genre de système de translation puisque le système de translation de la XRF portable a été préalablement développé via le même concept [53]. Dans le cas présent, les contraintes de déplacements et de poids maximal à supporter sont différents. Il s’agit ici de déplacer des échantillons, de tailles et de poids variables, et non plus de déplacer un système d’analyse figé.

Le nouveau dispositif doit respecter le cahier des charges suivant :

- commandes à distance et en local avec des positions limites définies par l'utilisateur pour protéger l'oeuvre d'art, l'échantillon industriel,... ;
- déplacement selon X par pas de 30 microns ;
- déplacement selon Y par pas de 30 microns ;
- déplacement selon Z sur un mètre ;
- rotation ;
- charge supportable de 50 kg ;
- adaptable et modulable ;
- grande rigidité.

Le choix s'est porté sur l'utilisation d'un système de grands déplacements associé à un système de déplacements plus fins.

Le point d'analyse se fait à l'aide du laser intégré dans la ligne de transport en amont de la chambre sous vide et d'une caméra CCD positionnée sur le nez d'extraction.

### 1.5.3 Modernisation du système d'acquisition électronique

La zone de travail associée à la ligne de transport de faisceaux dédiée aux analyses archéométriques peut utiliser pas moins de 4 détecteurs simultanément pour tirer profit de trois méthodes IBA : RBS, PIXE, PIGE. La chaîne d'acquisition traitant les signaux électriques de chaque détecteur est basée sur un schéma similaire détaillé par la figure 1.21. La partie à gauche de la ligne pointillée, comprenant le détecteur et son alimentation, le pré-amplificateur et l'amplificateur n'a pas fait l'objet de modification. Par contre, le convertisseur analogique-digital (ADC), l'analyseur multi-canal (MCA) et l'ordinateur ont été améliorés. Les anciens éléments, le MCA-ADC Canberra S35+ et le Power Macintosh 7500/100, étaient en effet sujet à abandonner la vie de manière inopinée dans des délais plus ou moins brefs. Afin d'éviter tout problème pouvant stopper les recherches fondamentales et les analyses archéométriques basées sur l'utilisation des méthodes par faisceaux d'ions pour une durée importante, les techniciens ont développé un nouveau système d'acquisition "home made". La figure 1.22 reprend le nouveau système basé sur l'utilisation de quatre cartes électroniques, dont les ports d'entrée DB25 se trouvent en façade. Le nouveau dispositif permet donc également de récupérer les données de quatre chaînes de détection simultanément. Il a l'avantage de transmettre les informations non plus via

une connexion antique mais via un connecteur réseau RJ45. Les données sont donc accessibles sur n'importe quel ordinateur connecté au réseau local.

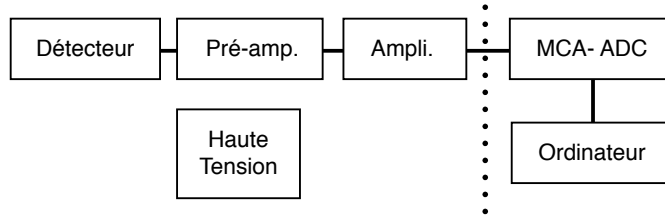


FIGURE 1.21 – Schéma d’une chaîne d’acquisition classique.

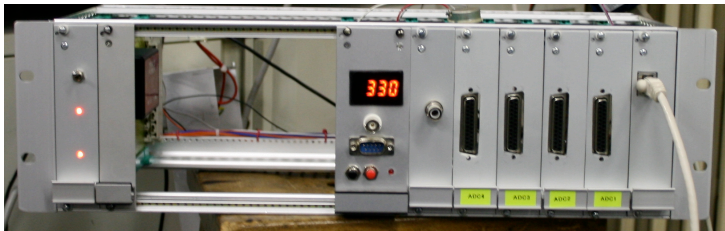


FIGURE 1.22 – Nouveau MultiChannel Analyzer “home made”.

Un nouveau logiciel écrit en JAVA (figure 1.23) a été développé par nos techniciens afin de traiter les données issues du “MCA Home Made”. Il permet de visualiser en temps réel les quatre spectres acquis selon des paramètres d’acquisition modifiables :

- le temps d’analyse, en seconde ;
- le nombre de canal par spectre, en multiple de 1024 ;
- le mode de contrôle de la dose et de l’arrêt faisceau ;
  - le choix de la durée de l’analyse ;
  - le choix du nombre de coups produits par l’intégrateur de courant récupérant le courant sur le nez d’extraction ;
  - le choix du nombre de coups intégrés dans une région d’intérêt d’un spectre. Par exemple, un pic de l’or sur le spectre RBS.

Il permet aussi d'effectuer un premier traitement rapide des données :

- la calibration en énergie ;
- le choix de l'échelle linéaire ou logarithmique ;
- le calcul de la résolution ;
- l'intégration du nombre de coups dans une région d'intérêt ;
- la sélection d'un canal afin de connaître son énergie après calibration ;
- le format texte d'exportation afin qu'ils soient lisibles par les différents logiciels de traitement (GupixWin, SIMNRA,...) adaptés à la méthode envisagée ;
- le temps mort de l'électronique.

De plus, le programme permet d'effectuer toutes les manipulations, y compris de lancer et stopper une acquisition, sur les quatre spectres indépendamment l'un de l'autre.

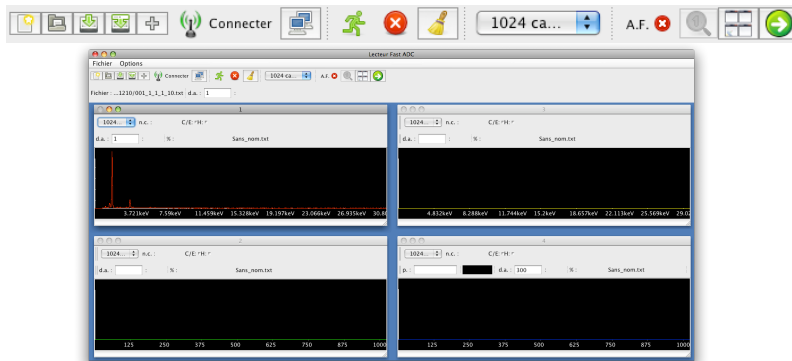


FIGURE 1.23 – Interface du logiciel d'acquisition.

#### 1.5.4 Le système “Time Of Flight”

Un dispositif de mesure de l'énergie des particules accélérées par le cyclotron est en cours de développement au sein de l'institut, par G. Chêne, afin de répondre à la nécessité d'une précision en énergie de l'ordre du keV, selon le couple particule/énergie considérée, pour les mesures de sections efficaces Non-Rutherford dans le cadre de la méthode RBS.

En effet, la relation établie lors de l'installation du cyclotron entre la fréquence de modification de la tension accélératrice au sein de l'accélérateur

et de l'énergie extraite ne permet pas d'obtenir une mesure en temps réelle suffisamment précise de l'énergie des particules incidentes du faisceau. De plus, l'emploi de nombreux éléments magnétiques le long de la ligne de transport empêche la répétabilité exacte d'un faisceau de même énergie pourtant réalisé avec les mêmes paramètres, à cause des phénomènes d'hystérésis des électro-aimants. Dans un premier temps, des sondes RMN (Résonance Magnétique Nucléaire) ont été disposées au sein des électro-aimants "Berkeley" de l'analyse, qui sont les facteurs influençant le plus la sélection en énergie. Elles permettent d'établir une relation entre le champ magnétique impliqué et l'énergie des particules en fin de ligne. Ce dispositif s'est montré efficace lors de différents balayages en énergie, mais il manque de précision pour la réalisation des mesures de sections efficaces Non-Rutherford à cause, entre autre, du manque de stabilité des alimentations des électro-aimants.

Constituant une prometteuse alternative au long et conventionnel balayage d'un grand nombre d'événements de résonances nucléaires, le principe retenu consiste à déduire l'énergie des particules incidentes par une mesure directe et rapide de leur temps de parcours sur une distance connue et fixe. La possibilité d'appliquer cette technique connue sous le nom de "Temps de Vol" ("Time of Flight") à des mesures d'énergie, repose donc sur la capacité à mesurer ces temps de parcours avec la précision requise [54].

La technique tire profit de la structure temporelle naturellement pulsée du faisceau produit par le cyclotron, au contraire des accélérateurs linéaires. En effet, le caractère continu du faisceau produit par des accélérateurs linéaires ne permet pas de différencier le passage de paquets d'ions différents. Il est dès lors impossible de mesurer le temps de parcours d'un paquet précis puisqu'il est indissociable des autres. De surcroît, de part leur fonctionnement linéaire, les accélérateurs de ce type ne nécessitent qu'une courbe de calibration entre la tension accélératrice appliquée et l'énergie réelle des particules. Celle-ci est obtenue à l'aide de seulement quelques résonances ponctuelles couvrant la totalité de la gamme d'énergie disponible.

Dans la pratique, des dispositifs permettent d'identifier le passage d'un paquet d'ions dans le cas d'un faisceau pulsé. L'utilisation de l'émission secondaire d'électrons lors de la traversée d'une feuille de carbone ultra mince permet de s'affranchir de l'interception du faisceau primaire, afin qu'il puisse interagir avec l'échantillon en fin de ligne de transport. L'application d'un champ électrostatique, plus facile à mettre en oeuvre qu'un champ magnétique, permet d'assurer la déflexion sélective de ces électrons et ainsi de les séparer du faisceau primaire. L'obtention et la transmission ultra-rapide des signaux de "Start" et de "Stop" sont dès lors assurées par une chaîne de dé-

tection :

- Deux détecteurs de type Micro Channel Plate (MCP) ou galettes de microcanaux assurant la collecte des paquets d'électrons secondaires et la production d'une impulsion électrique reproduisant les propriétés temporelles du faisceau primaire et ce, avec une résolution temporelle de l'ordre de quelques picosecondes.
- Deux chaînes électroniques similaires associées à chacun des détecteurs et comprenant un préamplificateur de signal, un discriminateur (Constant Fraction Discriminator) permettant de sélectionner la région d'intérêt du signal analogique fourni, transmettent ce signal à un convertisseur digital de temps (TDC) qui à son tour permet le référencement, sur une base de temps commune, des différents temps de passage  $t_1$  et  $t_2$  des paquets d'ions devant chacun des points de détection.

L'ensemble du système constitué d'un tube sous vide secondaire de dimension fixé à 2 mètres et de deux points de détections situés à ses extrémités a été initialement conçu pour s'adjoindre au bout de la ligne Haute Energie-Haute Résolution mais il peut être avantageusement déplacé et utilisé sur d'autres dispositifs ou lignes de faisceaux.

## Chapitre 2

# Etudes et conceptions des déflecteurs

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Déflecteur en voie 5 . . . . .</b>	<b>103</b>
<b>2.2</b>	<b>Déflecteur en voie 8 . . . . .</b>	<b>104</b>
<b>2.3</b>	<b>Etude des trajectoires . . . . .</b>	<b>105</b>
<b>2.4</b>	<b>Etude du cas des particules <math>\alpha</math> . . . . .</b>	<b>108</b>
<b>2.5</b>	<b>Applications préliminaires des déflecteurs . . . .</b>	<b>109</b>
2.5.1	Protons, déflecteur 7 cm, 0,57 T, $d=0,6$ cm et $d=1,2$ cm . . . . .	111
2.5.2	Protons, déflecteur 4 cm, 0,85 T, $d=1$ cm et $d=3$ cm . . . . .	112
2.5.3	Alphas, déflecteur 4cm, 0,85 T, $d=0,8$ cm . . . .	113
2.5.4	Interprétations des résultats . . . . .	114

---

La technique employée pour éviter l'absorption due à la fenêtre d'entrée, tout en préservant le cristal du détecteur X, est l'utilisation d'un champ magnétique, capable de dévier les particules chargées. Les particules rétro-diffusées par l'échantillon qui arrivent dans un champ magnétique, avec une vitesse initiale perpendiculaire à  $\vec{B}$ , possèdent dans ce champ une trajectoire circulaire, située dans le plan perpendiculaire à  $\vec{B}$  comprenant  $\vec{v}$ , suite à l'action de la force de Lorentz :

$$\vec{F}_L = q\vec{v} \wedge \vec{B} \quad (2.1)$$

Le rayon du cercle est donné par la relation suivante qui définit le rayon

de Larmor :

$$R_L = \frac{m |\vec{v}|}{|q| |\vec{B}|} \quad (2.2)$$

où  $m$  est la masse de la particule,  $q$  sa charge,  $\vec{v}$  sa vitesse et  $\vec{B}$  le champ magnétique dans lequel elle est plongée.

Par conséquent, un dispositif placé devant le détecteur et constitué de deux aimants reliés entre eux par une structure en fer doux (afin de confiner les lignes de champ) peut créer un champ magnétique perpendiculaire à la direction des particules rétrodiffusées ( $\vec{B}$  situé dans le plan horizontal) capable de dévier les particules incidentes d'une distance supérieure au diamètre de la fenêtre d'entrée du détecteur (voir figure 2.1). Ceci rend inutile l'ajout de béryllium devant la fenêtre d'entrée du détecteur.

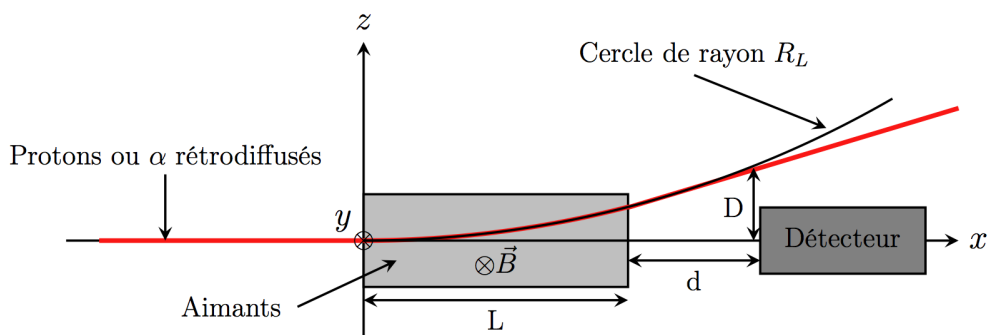


FIGURE 2.1 – Trajectoire des protons dans le déflecteur.

Dans le cas de protons ou de particules  $\alpha$  qui arrivent avec une vitesse initiale connue et situés dans le plan horizontal (selon l'axe  $X$  sur la figure 2.1) perpendiculaire à  $\vec{B}$  ( $\vec{B}$  selon l'axe  $Y$ ), leur déviation se fera dans le plan vertical (selon l'axe  $Z$ ). La trajectoire est un arc de cercle tant que la particule se situe dans le déflecteur, pour devenir une droite tangente au cercle de rayon  $R_L$  centré en  $(0,0,R_L)$  dès sa sortie du champ magnétique. La déviation  $D$  de la particule par rapport à sa direction initiale dépend de plusieurs paramètres :

- la vitesse de la particule incidente ;
- l'intensité du champ magnétique ;



- la longueur de l'aimant  $L$  ou la distance parcourue par la particule entre les aimants ;
- la distance  $d$  entre la fin du déflecteur et le détecteur.

Il faut aussi connaître la position d'entrée de la particule dans le déflecteur afin de déterminer sa position de sortie et donc la distance parcourue par la particule dans le champ magnétique. Deux possibilités peuvent se présenter :

- soit la particule a une énergie assez importante, auquel cas sa déviation dans le champ magnétique est faible. La particule parcourt alors l'entièreté de l'aimant et sort du déflecteur par la face arrière ;
- soit, l'énergie est plus faible, ce qui implique une déviation importante. Dans ce cas, la particule sort du déflecteur par sa face latérale.

La connaissance de l'ensemble de ces paramètres permet de calculer l'équation de la trajectoire dont définit la déviation  $D$  de la particule.

## 2.1 Déflecteur en voie 5

Pour réaliser le déflecteur de la voie 5, deux aimants rectangulaires de 70x12x6 mm capables de créer un champ dans leur entourage d'environ 1,3 T ont été utilisés. Les deux aimants ont été placés côte à côte, à une distance d'environ 5 mm, et l'interstice a été comblé par une plaque de Plexiglas, un matériau léger qui permet d'éviter l'émission, par les parois des aimants, de rayons X détectables. Cette plaque a été percée en son centre d'un trou de la dimension de la fenêtre du détecteur, soit de 3 mm de diamètre, pour permettre le passage des rayonnements en direction du cristal (figure 2.2).

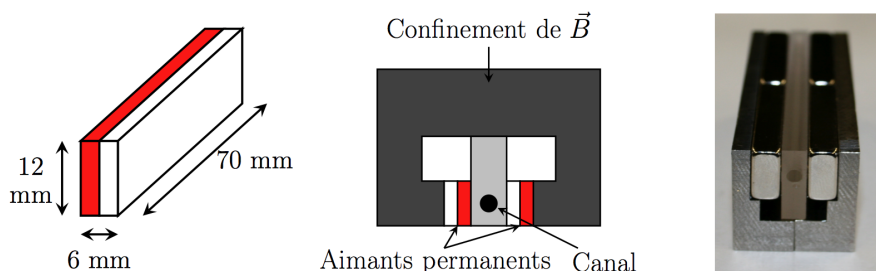


FIGURE 2.2 – Schémas et photographie du déflecteur de la voie 5.

## 2.2 Déflecteur en voie 8

Le déflecteur de la voie 5 est parfait pour les mesures réalisées en PIXE. Puisque le détecteur est à l'air libre, la place est suffisante et l'encombrement n'est pas le critère principal. Sur la nouvelle ligne d'analyse, le détecteur Si(Li) doit pouvoir être placé à l'intérieur de la chambre à vide afin de réaliser des mesures de section efficace de production de rayons X. La place disponible est donc limitée et le nez du détecteur doit être placé le plus près possible de l'échantillon afin d'éviter les pertes d'intensité des rayons X par diffusion sur les molécules d'air résiduelles. La géométrie du dispositif a été revue afin d'en réduire la taille au maximum.

Des aimants plus fins, mais créant un champ magnétique aussi intense que les premiers, sont nécessaires afin de réduire l'encombrement global du dispositif. La géométrie de la structure en fer doux qui confine les lignes de champ magnétique a été modifiée. Cette pièce métallique est beaucoup plus petite afin d'entrer dans le canal prévu dans la chambre à vide. De plus, la forme rectangulaire du premier dispositif est fort peu adaptée étant donné que les lignes de champ rejoignent les aimants de manière cylindrique. La nouvelle structure a donc une forme cylindrique (figure 2.3), ce qui diminue les pertes et donc donne un champ magnétique plus intense.

Un dispositif à géométrie cylindrique de longueur identique au premier a donc été créé. Il utilise des aimants très fins de 70x4x2 mm espacés de 3 mm qui génèrent un champ magnétique intense mais inférieur à 1,3 T. Cette valeur nous est inconnue car les aimants sont formés par la superposition de deux aimants de 1 mm d'épaisseur. La seule donnée disponible est le champ magnétique mesuré au moyen d'un gaussmètre (Gaussmeter Tmeter FH 51 de la firme Magnet Physik utilisé avec une sonde Axial Hall Probe). La longueur du dispositif a aussi été réduite au maximum. Le problème est que des aimants de champ magnétique aussi intense ne sont nécessaires que pour des énergies importantes. Pour des énergies plus faibles, des aimants de champ magnétique moins intense et donc de taille plus réduite peuvent être utilisés. Pour ne pas changer de déflecteurs en permanence (ce qui implique une remise à l'air de la chambre), l'idée est de concevoir un seul déflecteur (fixe par rapport à l'échantillon) capable de dévier de manière efficace des protons de moyenne énergie et de reculer le détecteur par rapport à celui-ci quand l'énergie des particules incidentes augmente. Étant donné que le système est sous vide, la diffusion est faible et les protons une fois déviés ne

devraient pas retourner vers le détecteur.

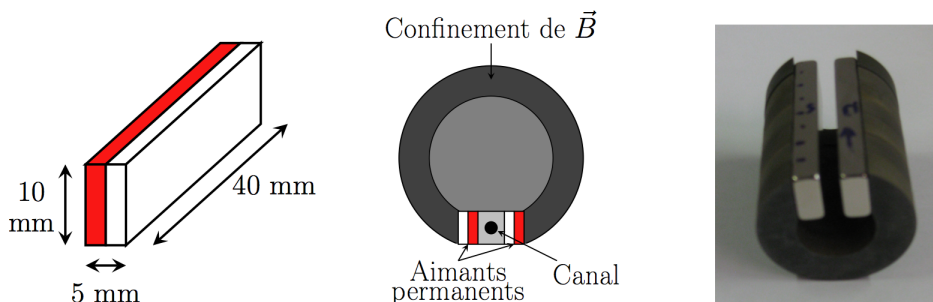


FIGURE 2.3 – Schémas et photographie du défecteur de la voie 8.

Le dispositif final utilise des aimants de 1,2 T mesurant 40x10x5 mm et espacés de 4 mm. Sa taille totale est de 4 cm de long pour un diamètre de 3 cm, ce qui est nettement mieux que la première mouture du défecteur, et permet le positionnement du détecteur dans la chambre à vide au plus près de l'échantillon analysé.

## 2.3 Etude des trajectoires

Le tableau 2.1 donne les valeurs de  $D$  pour des protons d'énergie susceptible d'être produite par le cyclotron de Liège. La valeur du champ magnétique est de 0,57 T et correspond à la valeur mesurée pour le défecteur circulaire de 7 cm de long. La trajectoire est calculée pour des particules qui entrent centrées par rapport aux aimants. Vu la hauteur du dispositif (4 mm), les protons sortent du défecteur par la face latérale de celui-ci, quelle que soit l'énergie envisagée.

Comme les particules entrant dans le défecteur doivent être déviées d'une distance égale au diamètre de la fenêtre d'entrée du détecteur (environ 3 mm), on peut dire que le défecteur sera efficace pour un faisceau de particules pouvant atteindre 13 MeV. En dessous d'une telle énergie, chaque particule qui pénètre dans le canal sortira déviée de manière à ne pas percuter le cristal de silicium. Vu que les particules qui nous concernent sont rétrodiffusées, elles ont déjà perdu une partie de leur énergie lors de la collision élastique. L'énergie du faisceau incident peut donc être légèrement supérieure à 13 MeV.

Energie (MeV)	Déviatiion $D$ (mm)	Déviatiion $D$ (mm)	Energie (MeV)	Déviatiion $D$ (mm)	Déviatiion $D$ (mm)
	$d= 0,6$ cm	$d= 1,2$ cm		$d= 0,6$ cm	$d= 1,2$ cm
1	7,58	8,34	11	3,24	3,66
2	6,04	6,68	12	3,13	3,54
3	5,27	5,84	13	3,03	3,43
4	4,75	5,29	14	2,94	3,33
5	4,39	4,9	15	2,85	3,23
6	4,11	4,59	16	2,77	3,15
7	3,87	4,34	17	2,70	3,07
8	3,68	4,13	18	2,64	3,00
9	3,52	3,95	19	2,57	2,93
10	3,37	3,80	20	2,51	2,87

TABLE 2.1 – Déviatiion calculée pour le déflécteur circulaire de 7 cm de long.

Le tableau 2.2 donne la valeur de la déviatiion  $D$  à la sortie du déflécteur circulaire de 4 cm pour des protons dont l'énergie est comprise entre 1 et 20 MeV, plongés dans un champ magnétique de 0,85 T. L'entrée des particules se fait aussi centrée par rapport aux aimants. Ici, la sortie des protons s'effectue par la face arrière du déflécteur pour toutes les énergies étant donné la longueur réduite des aimants.

Energie (MeV)	Déviatiion $D$ (mm)	Déviatiion $D$ (mm)	Energie (MeV)	Déviatiion $D$ (mm)	Déviatiion $D$ (mm)
	$d= 1$ cm	$d= 3$ cm		$d=1$ cm	$d= 3$ cm
1	7,19	12,06	11	2,13	3,55
2	5,03	8,41	12	2,04	3,4
3	4,1	6,84	12	2,04	3,4
4	3,54	5,91	14	1,89	3,15
5	3,17	5,28	15	1,82	3,04
6	2,89	4,82	16	1,77	2,94
7	2,67	4,46	17	1,71	2,85
8	2,5	4,17	18	1,66	2,77
9	2,36	3,93	19	1,62	2,7
10	2,23	3,73	20	1,58	2,63

TABLE 2.2 – Déviatiion calculée pour le déflécteur circulaire de 4 cm de long.

Ce défecteur est nettement plus efficace que le premier étant donné sa longueur. Le détecteur pourra être collé directement au dispositif pour des énergies inférieures à 3 MeV, puisque les particules sont déviées de plus de 3 mm. En ce qui concerne les protons de plus haute énergie, le tableau 2.3 donne le recul  $d$  nécessaire pour éviter la détérioration du cristal de silicium.

Energie (MeV)	Recul $d$ (mm)	Energie (MeV)	Recul $d$ (mm)
1	0	11	22,09
2	0	12	23,96
3	1,91	13	23,96
4	5,32	14	27,50
5	8,33	15	29,17
6	11,04	16	30,78
7	13,54	17	32,35
8	15,87	18	33,87
9	18,05	19	35,35
10	20,12	20	36,79

TABLE 2.3 – Recul nécessaire pour éviter la détérioration du cristal.

## 2.4 Etude du cas des particules $\alpha$

La trajectoire des protons et des particules  $\alpha$  est identique car la masse des  $\alpha$  est quatre fois plus grande que la masse des protons et la charge des  $\alpha$  est deux fois plus grande que celle des protons. On obtient alors les relations suivantes pour le rayon de Larmor :

$$R_{L\alpha} = \frac{m_\alpha \sqrt{2E/m_\alpha}}{q_\alpha B} = \frac{4m_p \sqrt{2E/4m_p}}{2q_p B} \quad (2.3)$$

$$R_{Lp} = \frac{m_p \sqrt{2E/m_p}}{q_p B} \quad (2.4)$$

Ce qui implique  $R_{L\alpha} = R_{Lp}$  donc que les calculs effectués précédemment sont censés toujours être d'application. Ce n'est malheureusement pas le cas. En effet, des échanges de charges peuvent s'effectuer et les noyaux d'hélium peuvent récupérer des électrons, ce qui modifie leur charge. Ces échanges de charges ont lieu dans la fenêtre d'extraction du faisceau, dans le milieu qui sépare le nez de l'échantillon et l'échantillon du détecteur à savoir de l'hélium, dans l'échantillon lui-même et dans la fenêtre d'entrée du détecteur. Dans le cas des particules  $\alpha$ , il y a donc trois types de particules qui peuvent arriver dans le déflecteur ( $He^{2+}$ ,  $He^{1+}$  et  $He^0$ ). Les  $He^{2+}$  ne posent pas de problème et se comportent comme des protons. Par contre, les particules neutres sont insensibles au champ magnétique et vont venir perturber les mesures. Le problème ne pourra pas être résolu mais leur nombre limité ne devrait pas endommager le cristal de silicium. Enfin, les  $He^{1+}$  sont déviées par le déflecteur mais de manière moins efficace étant donné leur faible charge. Le tableau 2.4 montre la déviation des particules  $He^{2+}$  et  $He^{1+}$  pour une distance  $d = 0.8$  cm, un champ magnétique de 0,85 T et une longueur  $L$  de 4 cm. Une très nette différence entre les deux valeurs est observée. Le déflecteur est beaucoup moins efficace pour ce type de particules, le détecteur doit être reculé nettement plus loin lorsqu'on utilise un faisceau de particules  $\alpha$ . Le recul nécessaire afin d'obtenir une déviation supérieure à 3 mm est donné dans le tableau 2.5.

Energie (MeV)	Déviati D (mm)	Déviati D (mm)	Energie (MeV)	Déviati D (mm)	Déviati D (mm)
	$He^{2+}$	$He^{1+}$		$He^{2+}$	$He^{1+}$
1	6,70	3,31	11	1,99	0,99
2	4,68	2,33	12	1,90	0,95
3	3,82	1,90	13	1,83	0,91
4	3,31	1,65	14	1,76	0,88
5	2,95	1,47	15	1,70	0,85
6	2,70	1,34	16	1,65	0,82
7	2,49	1,24	17	1,60	0,80
8	2,3	1,16	18	1,55	0,78
9	2,20	1,10	19	1,51	0,76
10	2,09	1,04	20	1,47	0,74

TABLE 2.4 – Déviation calculée pour le déflecteur circulaire de 4 cm de long.

Energie (MeV)	Recul d (mm)	Energie (MeV)	Recul d (mm)
1	5,32	11	64,29
2	15,87	12	68,04
3	23,96	13	71,64
4	30,78	14	75,10
5	36,79	15	78,44
6	42,22	16	81,67
7	47,22	17	84,80
8	51,87	18	87,84
9	56,23	19	90,80
10	60,36	20	93,68

TABLE 2.5 – Recul nécessaire pour éviter la détérioration du cristal.

## 2.5 Applications préliminaires des déflecteurs

Pour être certain de l'efficacité des dispositifs, il faut procéder à quelques tests. Tout d'abord, l'intensité réelle du champ magnétique qui règne entre les deux aimants doit être mesurée. Cette opération a été réalisée au moyen d'un gaussmètre, dont la sonde a été placée dans le canal de chaque déflecteur. La valeur trouvée pour le déflecteur à géométrie carrée est de 0,67 T,

ce qui est assez bas par rapport au 1,3 T prédits par le fabricant. Les pertes importantes sont dues à la géométrie du noyau de fer doux utilisé pour le confinement du champ et à l'espacement de 5 mm entre les deux aimants. C'est cette valeur de 0,67 T qui a été utilisée pour le calcul théorique de déviation des particules rétrodiffusées. Ensuite, chaque déflecteur a été testé en le traversant avec un faisceau de particules chargées d'énergie variable (3,12-6-8,1-10,6 et 14,3 MeV pour les protons et 6-7-8- 10-12-14,2 MeV pour les particules  $\alpha$ ). Le déflecteur est centré sur le faisceau au moyen d'un rayon laser qui simule sa trajectoire. Le laser traverse le canal du déflecteur de part en part en son centre. Pour visualiser la position du faisceau une fois le champ magnétique traversé, un cristal de quartz a été placé quelques centimètres après le déflecteur. Ce cristal a pour propriété d'émettre de la lumière visible lorsqu'on le bombarde de particules chargées. La position du spot lumineux est enregistrée au moyen d'une caméra CCD fixe, ce qui permet de mesurer la déviation  $D$  des particules chargées. L'expérience a été réalisée sous flux d'hélium pour deux déflecteurs et deux positions différentes du cristal. Les images acquises par la caméra CCD ne peuvent malheureusement pas être enregistrées directement. Elles sont projetées sur deux moniteurs de contrôle disposés dans la salle des commandes du cyclotron. Pour réaliser les mesures, l'emplacement du spot lumineux créé par le faisceau sur le quartz a été signalé sur les deux écrans au moyen d'un point. Les deux écrans ont été ensuite photographiés plusieurs fois. Le traitement des images a été réalisé au moyen du programme "ImageJ" [55]. Celui-ci possède une commande permettant de mesurer directement des distances entre deux points et de convertir automatiquement cette distance en centimètres. Pour réaliser cette opération, il faut disposer d'une longueur étalon sur l'image. Une feuille de papier millimétré placée à côté du cristal a donc été ajoutée. Ce procédé a aussi été utilisé pour mesurer la distance  $d$  qui sépare l'extrémité des aimants du cristal. Afin de diminuer au maximum les erreurs de mesures, chaque expérience a été photographiée au moins deux fois sur deux moniteurs différents. Deux images ont été analysées pour chaque moniteur, ce qui nous fait quatre mesures par expérience. Une moyenne de ces mesures a ensuite été calculée.



### 2.5.1 Protons, déflecteur 7 cm, 0,57 T, $d=0,6$ cm et $d=1,2$ cm

Le premier déflecteur analysé possède deux aimants de 70x4x2 mm espacés de 3 mm. Le champ magnétique qui règne entre ceux-ci a été mesuré à 0,57 T. La distance qui sépare le cristal de la fin du déflecteur vaut 6 mm pour la première expérience et 12 mm pour la seconde. La trajectoire théorique des particules est la suivante : les protons suivent une trajectoire circulaire de rayon  $R_L$  tant qu'ils sont soumis au champ magnétique et continuent sur une droite tangente au cercle une fois sortis du déflecteur. Etant donné la taille réduite des aimants (4 mm de haut), les particules sortent du déflecteur avant d'avoir parcouru ces 7 cm de longueur. La connaissance de cette trajectoire permet de prédire la déviation  $D$  du faisceau afin de la comparer avec les valeurs expérimentales. Pour vérifier la cohérence de nos mesures, la courbe théorique a été ajustée sur les valeurs expérimentales. Cette courbe possède trois paramètres, à savoir : la longueur des aimants  $L$ , la distance cristal-déflecteur et l'intensité du champ magnétique. Les deux premiers paramètres sont fixés par le dispositif expérimental et le dernier est laissé libre. Il est ainsi possible de constater si la valeur du champ mesuré est cohérente avec la valeur trouvée suite à l'ajustement. Le flux d'hélium injecté à proximité du nez d'extraction permet de limiter la diffusion de protons et donc d'obtenir un faisceau le plus compact possible. Vu les distances utilisées ici, la diffusion est malgré tout assez importante, ce qui perturbe légèrement les mesures. De plus, bien que l'hélium soit injecté dans le canal du déflecteur, à la sortie de celui-ci on peut considérer que les protons rencontrent principalement des molécules d'air, ce qui augmente encore la diffusion.

Le graphique 2.4 reprend la déviation théorique des protons après leur passage dans le déflecteur, ainsi que les résultats expérimentaux. L'ajustement de ces courbes donne les intensités suivantes pour le champ magnétique :

- $B = 0,558 \pm 0,014$  T ;
- $B = 0,574 \pm 0,004$  T.

Ces valeurs sont en parfait accord avec la valeur de 0,57 T mesurée au moyen du gaussmètre.

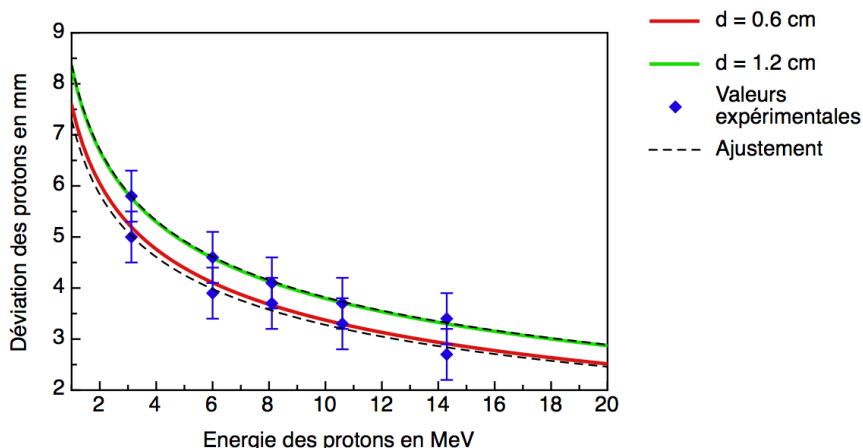


FIGURE 2.4 – Déviation des protons par le déflecteur de 0,57 T et 7 cm de long à une distance  $d = 0,6$  cm (en rouge) et  $d = 1,2$  cm (en vert).

### 2.5.2 Protons, déflecteur 4 cm, 0,85 T, $d=1$ cm et $d=3$ cm

Les mêmes manipulations ont été réalisées sur le second déflecteur décrit précédemment. Les distances de recul utilisées pour cette expérience sont de 1 cm et 3 cm. La mesure du champ magnétique a montré une diminution importante des pertes, en comparaison avec le déflecteur à géométrie rectangulaire. Ces deux montages utilisent des aimants de taille différente mais de puissance équivalente. Un champ magnétique de 0,85 T a été mesuré entre les deux aimants distants de 4 mm, ce qui est nettement supérieur au 0,67 T obtenu précédemment. La nouvelle géométrie circulaire est donc bien plus adaptée et permet d'obtenir un champ magnétique élevé avec des aimants assez fins. Une réduction de l'écartement entre les aimants contribue également à ce résultat. Les trajectoires des particules sont identiques à celles décrites dans la première expérience. Mais, contrairement à ce qui avait été observé précédemment, les protons parcourent l'entièreté du déflecteur. Ceci est dû aux dimensions de ce dernier, qui est deux fois plus court, mais aussi deux fois plus large que le premier dispositif expérimental. Ceci explique la légère différence de forme entre les courbes relatives aux deux déflecteurs. Ces petites dimensions permettent aussi de réduire la diffusion, ce qui augmente la précision des mesures et permet aussi un recul plus important du cristal (3 cm) afin de discerner plus facilement chaque point sur l'écran.

Le graphique 2.5 reprend la déviation théorique des protons après leur passage dans le déflecteur ainsi que les résultats expérimentaux. L'ajustement de ces courbes donne les intensités suivantes pour le champ magnétique :

- $B = 0,867 \pm 0,026$  T ;
- $B = 0,886 \pm 0,013$  T.

Ces valeurs sont en parfait accord avec la valeur de 0,85 T mesurée au moyen du gaussmètre.

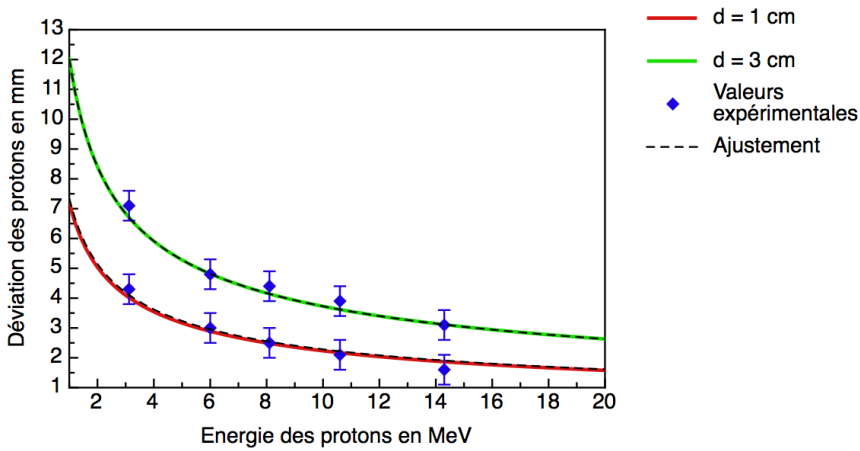


FIGURE 2.5 – Déviation des protons par le déflecteur de 0,85 T et 4 cm de long à une distance  $d = 1$  cm (en rouge) et  $d = 3$  cm (en vert).

### 2.5.3 Alphas, déflecteur 4cm, 0,85 T, $d=0,8$ cm

Afin de vérifier l'efficacité du dispositif dans le cas de l'utilisation de particules  $\alpha$ , les mêmes tests ont été réalisés sur le déflecteur de 4 cm et de 0,85 T. Etant donné les échanges de charges qui peuvent apparaître dans ce cas, il est possible d'observer deux spots lumineux différents sur les écrans, correspondant aux deux charges possibles ( $He^{1+}$  et  $He^{2+}$ ). Le graphique 2.6 reprend la déviation théorique des particules  $\alpha$  après leur passage dans le déflecteur ainsi que les résultats expérimentaux. L'ajustement de ces courbes donne l'intensité suivante pour le champ magnétique :

- $B = 0,916 \pm 0,010$  T.

Cette valeur est légèrement différente de la valeur mesurée au moyen du gaussmètre. La différence provient de la précision des mesures. En effet,

pour cette expérience, le cristal a dû être positionné assez près du déflecteur car le parcours des particules  $\alpha$  dans l'hélium est inférieur à celui des protons. La déviation du faisceau est donc moins marquée, ce qui rend les mesures moins précises. Deux trajectoires distinctes du faisceau n'ont pas été observées. Les pertes de charges sont donc assez faibles et la majorité des particules conservent leurs deux charges positives. Il faut toutefois remarquer que lors d'analyse PIXE, une partie de l'échantillon sera traversé par les particules rétrodiffusées ce qui pourrait amplifier le phénomène d'échange de charges.

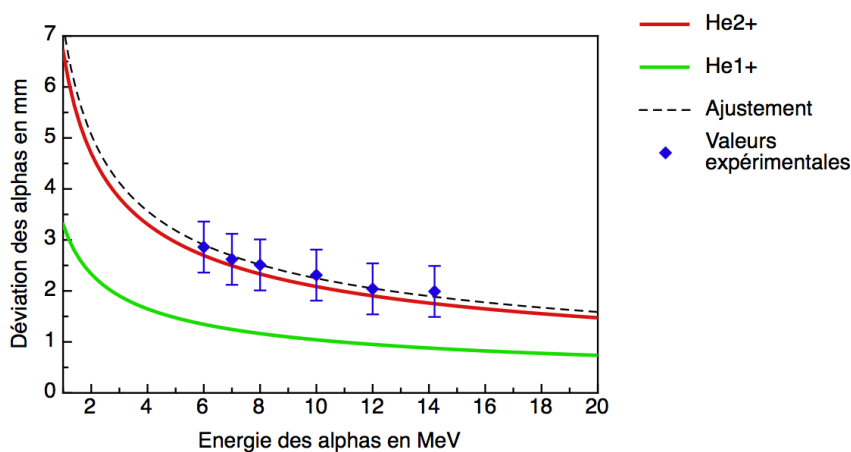


FIGURE 2.6 – Déviation des particules  $\alpha$  par le déflecteur de 0,85 T et 4 cm de long à une distance  $d = 0,8$  cm.

### 2.5.4 Interprétations des résultats

Les courbes permettent de déterminer que les déviations des différents faisceaux produits sont en parfait accord avec les valeurs obtenues par calcul des trajectoires. Les déviations ont été calculées au dixième de millimètre et mesurées avec une précision d'un demi-millimètre. Les résultats montrent des différences inférieures à 0,5 mm en toutes circonstances. Ces différences proviennent d'erreurs de mesures dues à la diffusion des particules. Ce phénomène augmente la taille du spot lumineux et modifie sa forme, ce qui diminue la précision de la mesure. Les déflecteurs sont donc totalement efficaces en ce qui concerne la déviation des particules rétrodiffusées.

# Conclusion

L'I.P.N.A.S possède donc désormais de nouvelles infrastructures et de nouvelles facilités dédiées à l'analyse par faisceau d'ions de Haute Energie-Haute Résolution produits par le cyclotron. Les deux lignes de transport de faisceaux permettent dorénavant de réaliser des expériences combinant les méthodes PIGE/PIXE/IBIL à l'atmosphère en voie directe (5) et les méthodes PIGE/PIXE/RBS à l'atmosphère en voie analysée (8) avec une technologie à jour. La diversité des couples énergie/particule disponibles laisse entrevoir des possibilités infinies dans le cadre de l'analyse des matériaux et/ou des objets du patrimoine culturel. Un faisceau peut, en effet, être préféré à un autre en fonction de l'échantillon et de la problématique scientifique à résoudre dans le cadre d'analyse par des méthodes non-destructives, non invasives, complémentaires et simultanées.

En complément de ces dispositifs d'analyses, la conception et la réalisation d'une chambre sous vide permet de réaliser des expériences de physique fondamentale lors de la mesure de sections efficaces Non-Rutherford et/ou de production de rayons X afin d'appliquer la diversité des couples énergie/particule disponibles avec les meilleures bases de données de traitement possible.



Troisième partie

Calibration des géométries de  
détection associées aux  
méthodes IBA





# Introduction

Une collaboration scientifique entre l'Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie de l'université de Liège et l'Ionenstrahlzentrum du Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf a été initiée dans le cadre de ma thèse doctorale.

Cette collaboration a été rendue possible en 2011 grâce aux financements du F.N.R.S et de la région wallonne au travers d'une bourse d'excellence Wallonie-Bruxelles International World.

L'objectif de cette collaboration est d'améliorer et de compléter les dispositifs scientifiques des deux entités, actives dans l'analyse par faisceaux d'ions extraits à l'atmosphère. Si les mêmes méthodes sont employées (PIXE/PIGE/RBS), leur mises en oeuvre diffèrent totalement d'un centre à l'autre. De la source d'ions accélérés à l'acquisition des spectres, en passant par la géométrie de détection, les variations sont nombreuses.



# Chapitre 1

## Ionenstrahlzentrum - Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf

### Sommaire

---

1.1	Les équipements au sein du Ionenstrahlzentrum - HZDR . . . . .	121
1.2	La ligne-Kanal 5 dédiée aux IBA . . . . .	125
1.3	La zone de travail extraite dédiée aux IBA . . .	126
1.3.1	La zone de travail en 1996 . . . . .	126
1.3.2	La zone de travail actuelle . . . . .	130

---

Ce chapitre a pour rôle d'introduire le lecteur aux facilités et aux équipements scientifiques utilisés lors de la collaboration.

### 1.1 Les équipements au sein du Ionenstrahlzentrum - HZDR

Comme le montre la figure 1.1, le centre dispose de quatre accélérateurs :

- L'accélérateur Van de Graaff de 2 MV.

L'accélérateur Van de Graaff 2 MV simple étage peut fournir des faisceaux de protons, de deutons et de particules  $\alpha$ . Il est principalement utilisé pour l'He-RBS/channeling, et également pour la NRA et l'He-

ERDA.

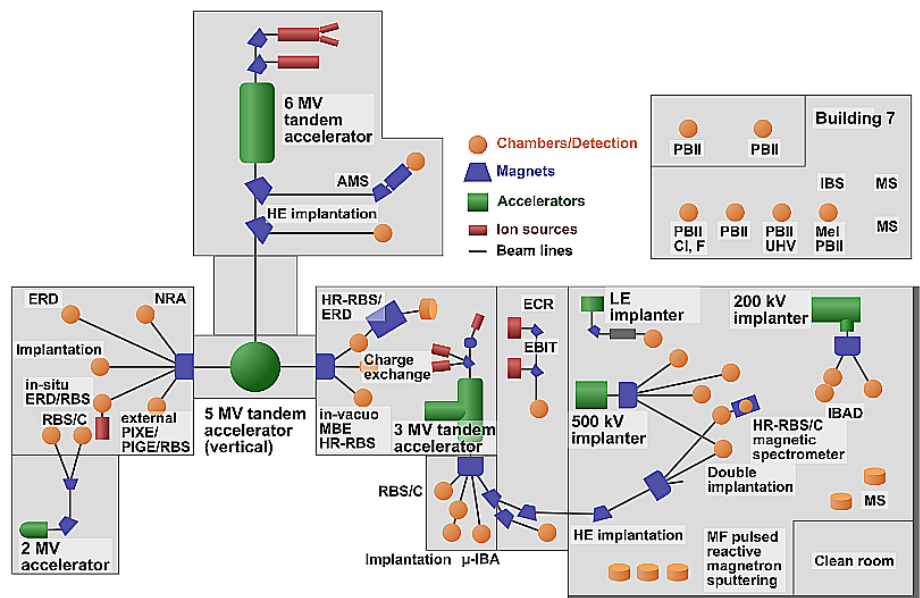


FIGURE 1.1 – Schéma des facilités.

Mise en fonctionnement	1963
Constructeur	Transformatoren- und Röntgenwerk Dresden-Germany
Tension du terminal	0,3 - 1,7 MV
Courant du faisceau	0,01 - 1,0 $\mu$ A
Type d'ions	1H, 2H, 4He
Source d'ion	RF ion source

TABLE 1.1 – Caractéristiques du Van de Graaff de 2 MV.

Situé dans la partie gauche du bâtiment, il est utilisé au travers de deux lignes de faisceaux :

- GONNY. GONNY consiste en une large chambre de diffusion équipée d'un goniomètre 4 axes contrôlé à distance pour les analyses RBS et NRA. Les échantillons peuvent être introduits grâce à un simple sas.

Les échantillons sont amenés en position d'analyse en fonction de coordonnées X-Y choisies par l'utilisateur sur une photographie des cibles réalisée dans une géométrie fixe à la salle de contrôle.

Le logiciel d'acquisition des données accepte jusqu'à 8 détecteurs simultanément. De plus, un détecteur est monté sur système rotatif de précision et peut être utilisé pour des mesures de double alignement.

- GOLF. La seconde ligne de faisceau se termine par une chambre standard de diffusion de 500 mm de diamètre. Un goniomètre 3-axes contrôlé à distance est utilisé pour les expériences de channeling et pour l'He-ERDA sur l'hydrogène.



FIGURE 1.2 – L'accélérateur Van de Graaff 2 MV.

- L'accélérateur tandem de 3 MV.

L'accélérateur tandem de 3 MV, situé au centre du bâtiment, sert à réaliser des implantations avec une haute intensité de courant et des analyses RBS au travers de six lignes de transport de faisceaux. Il possède également une ligne de micro-faisceaux pour des analyses IBA.

Mise en fonctionnement	1993
Constructeur	High Voltage Engineering Europa Amersfoort/Netherlands
Tension du terminal	0,1 - 3,3 MV
Courant du faisceau	0,001 - 200,0 $\mu$ A
Gamme d'énergie	0,2 - 8 MeV
Type d'ions	Tous
Source d'ion	Duoplasmatron model 358 + Li-charge exchange channel Cs sputter ion source IONEX 860-C

TABLE 1.2 – Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 3 MV.

- L'accélérateur tandem de 5 MV.

L'accélérateur vendu par High Voltage Engineering (HVEE), positionné verticalement dans le bâtiment est en cours de démontage. Il déservait les différentes lignes grâce à un aimant d'analyse ( $90^\circ$ ) puis à deux switchs présents à gauche et à droite de l'accélérateur. Au total, on recense 3 lignes de transport de faisceaux dédiées à différents dispositifs du côté droit (HR-RBS/ERD, échange de charge et in-vacuum MBE/HR-RBS) et 5 lignes de transport de faisceaux du côté gauche (NRA, ERD, Implantation, in-situ ERD/RBS et PIXE/PIGE/RBS extrait).

Mise en fonctionnement	1972
Arrêt de fonctionnement	Décembre 2010
Constructeur	Efremov Institute NIIIEFA St. Petersburg/ Russia
Tension du terminal	0,8 - 4,5 MV
Courant du faisceau	0,001 - 10,0 $\mu$ A
Gamme d'énergie	0,2 - 8 MeV
Type d'ions	Tous sauf les gaz nobles
Source d'ion	Off-axis duoplasmatron EKTON-4 Cs sputter ion source MISS-483

TABLE 1.3 – Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 5 MV.

- Le nouvel accélérateur tandem de 6 MV.

L'accélérateur également vendu par High Voltage Engineering (HVEE), situé au sous-sol du bâtiment, a été installé en 2009-2010 pour, d'une part remplacer l'ancien accélérateur de 5 MV tout en gardant ses lignes de transport de faisceaux et d'autre part ajouter deux nouvelles lignes (AMS et implantation d'He).

Mise en fonctionnement	2011
Constructeur	High Voltage Engineering Europa Amersfoort/ Netherlands
Tension du terminal	0,3 - 6 MV
Gamme d'énergie	0,6 - 50 MeV
Source d'ion	Duoplasmatron model 358 + Li-charge exchange channel Cs sputter source, model 860C

TABLE 1.4 – Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 6 MV.



FIGURE 1.3 – L'accélérateur Van de Graaff 6 MV.

De plus, l'Ionenstrahlzentrum possède plusieurs implantateurs sur le côté.

## 1.2 La ligne-Kanal 5 dédiée aux IBA

La ligne-Kanal 5 située en aval de l'accélérateur tandem de 6 MV fait l'objet de toutes les attentions puisqu'elle est dédiée aux analyses IBA en faisceaux extraits. Pour être extrait dans l'atmosphère, le faisceau doit préalablement parcourir les lignes de transport communes. L'accélérateur étant au sous-sol du bâtiment, un premier aimant d'analyse guide le faisceau à un angle de  $90^\circ$  pour le remonter au niveau des anciennes lignes de transport. Ensuite un deuxième aimant d'analyse, anciennement utilisé en sens inverse à l'époque de l'accélérateur tandem de 5 MV, est utilisé pour diriger le faisceau vers l'un des deux aimants de déviation - switches originaux. L'aimant de déviation qui nous intéresse se situe sur le côté gauche après deux quadrupôles. Cinq angles de déviation du faisceaux sont réalisables :  $-60^\circ$ ,  $-30^\circ$ ,  $0^\circ$ ,  $30^\circ$  et  $60^\circ$ . La ligne-Kanal 5 se situe à la sortie de l'aimant de déviation, à l'angle de  $60^\circ$ . Le faisceau peut dès lors traverser différents dispositifs qui le mettent en forme et le contrôlent :

- un premier jeu de fentes mobiles contrôlables à distance permet de contrôler et d'ajuster le courant du faisceau après le deuxième aimant d'analyse ;

- un deuxième jeu de fentes mobiles manuelles permet également de contrôler et d'ajuster le courant du faisceau après le switch. L'ouverture maximale des fentes est limitée à 0,2 mm dans chaque direction pour rester dans des conditions d'expériences comparables ;
- un quadrupôle focalise le faisceau pour contrôler et ajuster sa dimension sur l'échantillon ;
- un steerer magnétique permet d'effectuer de petits scan en X et en Y du faisceau ;
- un dernier jeu de fentes mobiles contrôlables à distance est placé en bout de ligne de manière à collimater le faisceau en fonction du courant désiré.

De plus, la forme et l'intensité du courant peuvent être visualisées grâce à un quartz, couplé à une caméra, positionnés juste avant le dernier jeu de fentes.

## 1.3 La zone de travail extraite dédiée aux IBA

### 1.3.1 La zone de travail en 1996

La figure 1.5 montre une représentation schématique de l'équipement extrait du Ionenstrahlzentrum Dresden-Rossendorf en 1996. La composante principale était le tube d'extraction amovible et échangeable, situé en aval de la ligne de transport sous vide, incluant la fenêtre d'extraction [56]. La fenêtre utilisée dans le dispositif est composée d'un alliage appelé Havar® (Goodfellow) d'une épaisseur de 2  $\mu\text{m}$ . Le fournisseur propose cet alliage non-magnétique de haute résistance de composition fournie dans les informations techniques :

Be 400 ppm, Co 42.5%, Cr 20%, Mn 1.6%, Mo 2%, Ni 13%, W 2.8%, C 2000 ppm, Fe en balance.

Une vanne était de plus positionnée après le quadrupôle au cas où la fenêtre se briserait afin de ne pas mettre toutes les lignes à l'air. Cependant, la fenêtre, n'étant pas organique, résiste plus longuement aux différences de pression. De plus, la détérioration de la fenêtre suite, aux dépôts d'énergie des différents faisceaux, dégrade petit à petit le vide avant que celle-ci ne se brise.





FIGURE 1.4 – photographie de l'extraction.

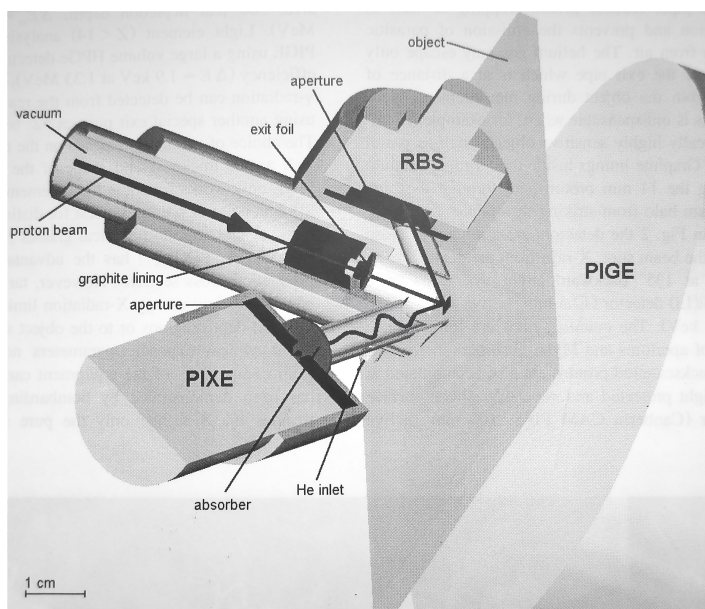


FIGURE 1.5 – Schéma de l'extraction.

Un flux continu d'hélium (4 l/min) introduit via l'arrière du tube, réduisait la perte d'énergie des particules (incidentes et rétro-diffusées) ainsi que l'absorption des rayons X et empêchait l'émission de rayonnements parasites issus de l'argon (Ar K : 2,95 keV) présent dans l'air. Le gaz d'hélium pouvait

seulement s'échapper en traversant le tube d'extraction, qui était positionné à 0,1-0,3 mm de l'objet pendant les mesures. La distance de travail était réduite au maximum de manière à augmenter l'angle solide de détection et à pouvoir dès lors diminuer le courant d'analyse à quelques centaines de picoampères. En effet, l'impact de la mesure sur l'état de conservation de l'oeuvre d'art doit être minimisé au vu de la fragilité de certains objets du patrimoine. Pour donner un ordre d'idée, le faisceau de routine de 4 MeV protons issu de l'accélérateur tandem 5 MV avait un diamètre de un à quelques mm pour 200 pA. Les figures 1.6, 1.7 et 1.8 et le tableau 1.5 reprennent les deux différentes géométries d'extraction de faisceaux, à Liège et à Dresden ainsi qu'une géométrie intermédiaire pour comparer, à même distance, la dispersion des particules incidentes du faisceau par les différentes fenêtres d'extraction.

	Liège	Liège	Dresden
Fenêtre d'extraction	100 nm $Si_3N_4$	100 nm $Si_3N_4$	2 $\mu$ m Havar®
Distance extraction-point d'analyse	13,2 mm He	30,3 mm He	30,3 mm He

TABLE 1.5 – Géométrie d'extraction à Liège, à Dresden et intermédiaire.

Il est clair que la fenêtre en Havar® interagit de manière plus importante avec le faisceau de particules accélérées que la fenêtre en nitrure de silicium. Cependant l'atmosphère d'hélium est mieux contrôlée et plus stable dans ce dispositif grâce au nez d'extraction.

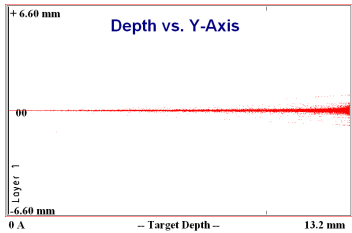


FIGURE 1.6 – Simulation de la géométrie d'extraction de Liège.

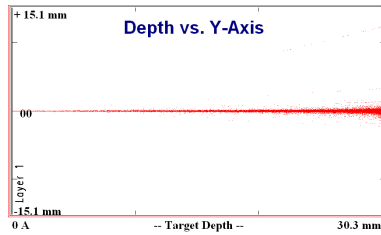


FIGURE 1.7 – Simulation de la géométrie d'extraction intermédiaire.

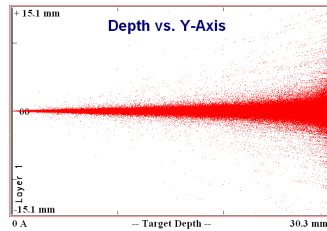


FIGURE 1.8 – Simulation de la géométrie d'extraction de Dresden.

Afin d'éviter toute interaction du halo du faisceau avec l'acier inoxydable des tubes sous vides, un revêtement en graphite avait été déposé sur la surface intérieure du dernier tube sous vide de la ligne de transport et le long des 11 mm du tube d'extraction.

Du côté de l'acquisition, trois détecteurs étaient agencés au plus proche du point d'impact du faisceau pour permettre la réalisation d'analyses PIXE/PIGE/RBS simultanées :

- un détecteur Si(Li) (Ortec) d'une surface active de  $12,5 \text{ mm}^2$  et de résolution de 170 eV à 5,9 keV était utilisé à  $45^\circ$  pour détecter les éléments de numéro atomique supérieur à 13 par la méthode PIXE. Le taux de comptage pouvait être optimisé par l'utilisation d'un jeu de diaphragmes ou par l'utilisation d'absorbeurs en Mylar devant la fenêtre d'entrée de  $2,5 \mu\text{m}$  en béryllium du détecteur ;
- un détecteur à barrière de surface (Canberra) avec un cristal d'une surface active de  $100 \text{ mm}^2$  sur une profondeur de déplétion de  $300 \mu\text{m}$  et de résolution de 30 keV à 5,4 MeV était utilisé à  $135^\circ$  pour compter les particules rétro-diffusées par la cible. Celui-ci était positionné au dessus du nez d'extraction, qui était troué obliquement ;
- un détecteur HPGe (Canberra) de 60% d'efficacité relative et de réso-

lution de 1,9 keV à 1,33 MeV était utilisé soit derrière la cible soit à  $52^\circ$  par rapport à la normale de la cible, en fonction de l'épaisseur de l'échantillon, pour détecter les rayons  $\gamma$  émis par les éléments légers de numéro atomique inférieur à 14.

Un second détecteur à barrière de surface sous vide était toutefois utilisé pour mesurer la dose de particules reçue par l'échantillon afin de normaliser les acquisitions. Cette dose était surveillée par la méthode RBS grâce à l'utilisation d'un chopper rotatif constitué de trois pins en tantale qui interceptait par intermittence le faisceau collimaté juste avant la fenêtre d'extraction. Ce dispositif pouvait être calibré grâce à une cage de Faraday.

### 1.3.2 La zone de travail actuelle

La première géométrie de la zone de travail a été complétée d'un deuxième détecteur Si(Li) de  $80 \text{ mm}^2$  (Canberra) de surface active et de 160 eV de résolution à 5,9 keV avec une fenêtre d'entrée de  $12,5 \text{ }\mu\text{m}$  en Béryllium [57]. Ce détecteur positionné à  $32^\circ$  est dédié à la détection des rayons X de plus hautes énergies  $E_x > 5,9 \text{ keV}$  (PIXE 2) tandis que le premier détecteur est dès lors dédié à la détection des rayons X de faibles énergies  $5,9 \geq E_x > 1,3 \text{ keV}$  (PIXE 1). La diminution de la section efficace de production de rayons X pour les éléments de grand numéro atomique est compensée par le choix d'un angle solide de détection plus grand, ce qui permet de limiter la dose et le courant lors des analyses afin de protéger au mieux les oeuvres d'art. L'angle de détection du PIXE 1 est passé à  $50^\circ$  et son déplacement est repéré au sol pour faciliter son alignement avec le point d'impact du faisceau.

Afin de réduire le taux de comptage des rayons X de faibles énergies du détecteur PIXE 2, celui-ci est protégé par un absorbeur en acrylique de 1 mm d'épaisseur bien que les rayons X aient déjà traversé une atmosphère de 17 mm d'hélium, un fin ruban adhésif et 26 mm d'air.

L'arrivée d'hélium a été nettement améliorée et compte actuellement 4 tubes d'entrée pour obtenir une meilleure stabilité de l'atmosphère, contrôlée par un débitmètre : un tube d'entrée en dessous et un au dessus du nez d'extraction juste après la fenêtre d'extraction, et un tube d'entrée de part et d'autre d'un tube reliant la fenêtre d'entrée du détecteur PIXE 1 au nez d'extraction. Ce système permet d'obtenir une atmosphère d'hélium parfaitement contrôlée sur les 30 mm de distance entre la fenêtre d'extraction et la fin du nez d'extraction (figure 1.9).



FIGURE 1.9 – Photographies du nez d'extraction.

Le nez d'extraction a été réalisé de manière à maximiser les angles solides de détection des 3 détecteurs (PIXE 1, PIXE 2, PIGE) et de telle sorte que le point focal des différents détecteurs soit à la sortie exacte du nez d'extraction. En effet, des moules des angles solides de détection ont été fabriqués afin de pouvoir positionner les 3 détecteurs en minimisant la distance à l'échantillon mais en gardant l'angle de détection maximal (figure 1.10). De ce fait, le nez d'extraction a été érodé selon la forme de ces moules. Il suffit donc de couvrir chaque détecteur de son moule pour le positionner dans le nez d'extraction et ainsi définir sa distance de travail et également le point d'analyse théorique. L'étape est réalisée pour les 3 détecteurs, successivement, de manière à obtenir un point d'impact commun. Ensuite le détecteur PIGE est reculé de 1 cm pour éviter les effets de bords. Le détecteur à barrière de surface a, quant à lui, été positionné en dessous au vu de l'espace disponible. Les particules rétro-diffusées à un angle de  $135^\circ$  sont récupérées après avoir traversé une tranchée creusée obliquement dans le nez d'extraction.

Le revêtement en graphite a été adapté à la nouvelle géométrie du nez d'extraction.

Si le point d'impact peut être visualisé par l'intermédiaire d'une caméra CCD ou à l'oeil nu, il suffit simplement, dans cette géométrie particulière de placer les échantillons au plus près (0,1 - 0,3 mm) du nez d'extraction lors des analyses. Pour ce faire, un support permettant de positionner aussi bien



FIGURE 1.10 – Photographies des moules des angles solides des détecteurs.

des grands que des petits objets est fixé au sol devant le nez d'extraction. Les mouvements en X et Z, perpendiculaires à la direction du faisceau, sont commandés via des moteurs pas à pas (0,1 mm) avec une lecture digitale des positions. Par contre, les mouvements en Y sont limités au mode manuel (un déplacement grand et un déplacement fin) pour s'assurer de ne pas abîmer l'échantillon dans une collision avec le nez d'extraction.

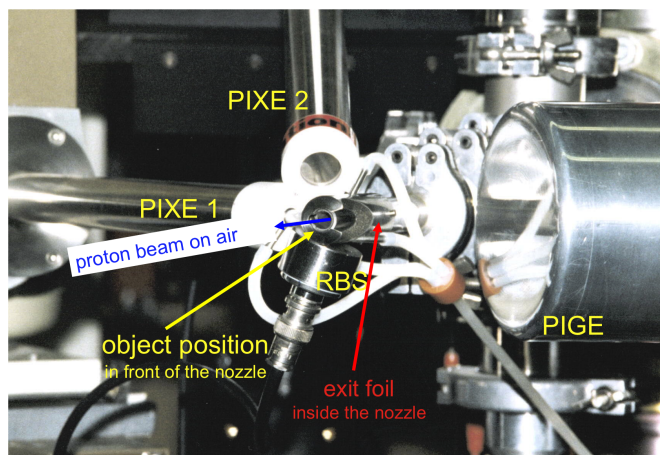


FIGURE 1.11 – Photographie de la géométrie d'analyse de la ligne - Kanak 5.

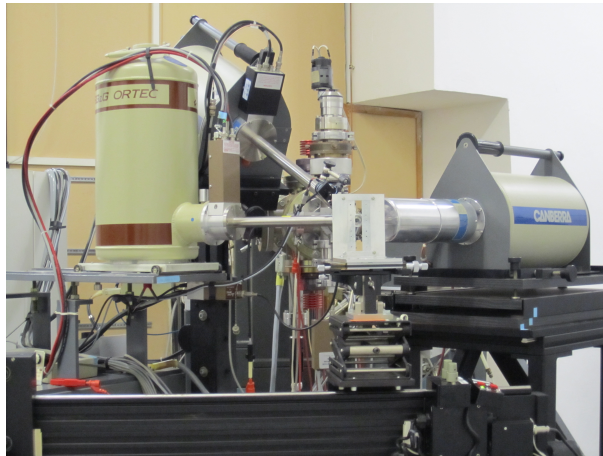


FIGURE 1.12 – Photographie de la géométrie d'analyse de la ligne - Kanal 5.

PIXE 1	
Tension	-1000 V
Shaping time	2 $\mu$ s
Amplification	50 x 1,24
Bruit de fond	100 mV
PIXE 2	
Tension	-500 V
Shaping time	8 $\mu$ s
Amplification	100 x 1,384
Bruit de fond	100 mV

PIGE	
Tension	+4500 V
Shaping time	4 $\mu$ s
Amplification	10 x 0,8
Bruit de fond	10 mV
RBS	
Tension	+70 V
Shaping time	2 $\mu$ s
Amplification	50 x 0,9
Bruit de fond	$\leq$ 50 mV
RBS - Dose	
Tension	+70 V
Shaping time	0,5 $\mu$ s
Amplification	50 x 1,401
Bruit de fond	$\geq$ 50 mV

TABLE 1.6 – Paramètres expérimentaux des détecteurs.



## Chapitre 2

# Caractérisation d'échantillons de référence en He-RBS

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Caractérisation du corpus d'échantillons de référence . . . . .</b>	<b>135</b>
2.1.1	Echantillons 1 . . . . .	136
2.1.2	Echantillons 2 . . . . .	139

---

Afin de caractériser précisément des échantillons de référence en terme de composition, de concentrations et d'épaisseur en vue d'une calibration des moyens de mise en oeuvre des méthodes par faisceaux d'ions à l'atmosphère, un corpus de cibles minces sur des substrats de carbone ou de silicium a été analysé par l'association méthode/géométrie/particule/énergie la plus adaptée au sein du HZDR : l'He-RBS.

## 2.1 Caractérisation du corpus d'échantillons de référence

La caractérisation des échantillons de référence par la méthode He-RBS a été mise en oeuvre à l'accélérateur Van de Graaff 2 MV de l'Ionenstrahlzentrum dans la chambre sous vide GONNY. Outre une meilleure résolution en énergie évidente, les résultats jouissent également d'une statistique importante et d'un bruit de fond très propre grâce à l'absence d'air ou de flux d'hélium dans l'enceinte d'analyse. De plus, la faible énergie utilisée habituellement, 1,7 MeV, permet de s'affranchir des réactions nucléaires ou

du manque de connaissance des données relatives aux sections efficaces Non-Rutherford des éléments légers qui poseraient problème à plus haute énergie. Les paramètres des expériences et de l'acquisition ont été définis et calibrés préalablement lors de différentes expériences, ce qui permet de s'affranchir de toutes ces expériences préliminaires tout en gardant une confiance maximale dans les résultats obtenus. En effet, la chambre sous vide GONNY est utilisée quotidiennement au travers de nombreuses collaborations intra-européennes.

Les paramètres sont repris ci-dessous :

- angle :  $160^\circ$  ;
- dose :  $10 \mu\text{C}$  (10000 coups de l'intégrateur de courant) ;
- temps mort : négligé ;
- énergie : 1,7 MeV ;
- particule :  $\alpha$  ;
- delta E : 1 keV ;
- résolution du détecteur : 18,94 keV ;
- surface active du cristal :  $100 \text{ mm}^2$  ;
- profondeur active du cristal :  $300 \mu\text{m}$  ;
- taille du faisceau : 2 mm de diamètre ;
- tension pour la déflexion des électrons secondaires : -160 V ;
- calibration en énergie du spectre : 1,8576.Canal + 12,5 (14) ;
- angle solide de détection :  $d\Omega = 3,1 \text{ msr}$ .

### 2.1.1 Echantillons 1

Une première série d'échantillons a été caractérisée par He-RBS pour choisir le meilleur substrat à utiliser pour calibrer les méthodes par faisceaux d'ions appliquées sous atmosphère. Le tableau 1.3 reprend la liste et les résultats des épaisseurs, mesurées par He-RBS et calculées par le logiciel SIMNRA [25], pour des échantillons composés de cibles minces déposées sur des substrats de carbone ou de silicium.

### Remarques

Les paramètres des expériences étant connus, la dose en particulier, le nombre de coups dans le palier correspondant aux substrats sur le spectre RBS se doit d'être simulé correctement par le logiciel si les données issues des sections efficaces Non-Rutherford sont exactes. Dès lors la stratégie suivante a été définie :

Echantillons	Dose	Particules x sr.	Epaisseur calculée	Erreur statistique (%)
Ti/C	10000	1,82E+11	72,6 $\mu g/cm^2$	0,3
Fe/C	10000	1,82E+11	50,24 $\mu g/cm^2$	0,3
Ni/C	10000	1,82E+11	89,6 $\mu g/cm^2$	0,2
Mo/C a	10000	1,82E+11	178,8 $\mu g/cm^2$	0,15
Mo/C b	10000	1,82E+11	170,9 $\mu g/cm^2$	0,15
Cr/Si	10000	1,82E+11	22,3 nm	0,5
Ti/Si	10000	1,82E+11	15,8 nm	0,8
Ni/Si	10000	1,82E+11	21,4 nm	0,4
Au/Si	10000	1,82E+11	19, nm	0,2

TABLE 2.1 – Cibles minces élémentaires sur un substrat de carbone ou de silicium.

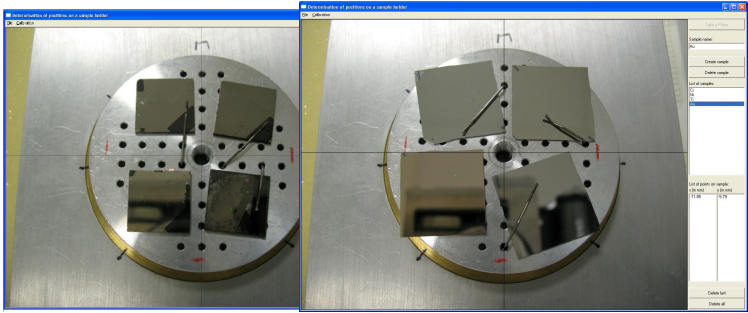


FIGURE 2.1 – Echantillons 1.

- mettre à jour les sections efficaces Non-Rutherford à l’aide de la base de données en ligne de l’IAEA via le portail SigmaCalc de IBANDL [58] ;
  - définir la dose expérimentale en simulant le palier du substrat à l’aide du logiciel SIMNRA ;
  - vérifier si la dose expérimentale est en accord avec la dose théorique ;
  - simuler le palier correspondant à la cible mince et en déduire son épaisseur à l’aide du logiciel SIMNRA ;
- Si plusieurs éléments sont présents dans la couche de surface (par exemple un métal oxydé), le logiciel SIMNRARES programmé par F. Munnik (HZDR) permet de calculer l’épaisseur réelle de la couche.

## Conclusion

Le suivi de cette stratégie a mis en évidence des erreurs importantes au niveau des sections efficaces Non-Rutherford du carbone. En effet, les paliers de silicium sont bien simulés pour une dose expérimentale similaire à la dose théorique, cependant ce n'est pas le cas pour le carbone comme le montre la figure 2.2.

De ce fait, les échantillons de référence déposés sur un substrat de silicium ont été préférés pour la suite des expériences liées à la calibration des méthodes par faisceaux d'ions extraits à l'atmosphère.

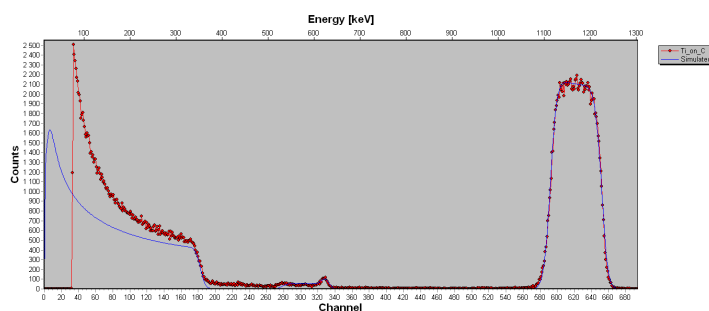


FIGURE 2.2 – Spectre et simulation de l'échantillon Ti/C.

### 2.1.2 Echantillons 2

Une deuxième série d'échantillons composée de couches minces, allant théoriquement de 50 à 100 nm, a été analysée afin de caractériser de nouvelles références. Les deux épaisseurs ont été sélectionnées afin de soit augmenter la statistique si cela était nécessaire lors des expériences sous faisceaux extraits soit réduire la largeur du palier correspondant à la couche de surface en RBS pour s'assurer de le différencier du palier du substrat. Pour rappel, la résolution en énergie avec des protons, et donc la possibilité de distinguer deux énergies différentes, est largement moins bonne que celle obtenue avec des particules  $\alpha$ . De plus, le nombre de canaux des spectres est limité à 1024 dans la chaîne d'acquisition en ligne - Kanal 5, c'est-à-dire quatre fois moins qu'avec GONNY.

Le tableau 1.4 reprend la liste des échantillons et leurs épaisseurs mesurées par He-RBS et calculées par le logiciel SIMNRA. Si la présence d'oxygène a été détectée, la densité du matériau est corrigée pour calculer l'épaisseur.

Echantillons	Dose	Densité (g/cm <sup>3</sup> ) si O	Epaisseur calculée (nm)	Erreur Statistique (%)
Nb(50)/Si	10000	7,3	77,4	0,2
Nb(100)/Si	10000	7,3	110	0,2
Ti(50)/Si	10000	4,23	34,7	0,6
Ti(100)/Si	10000	4,23	73,5	0,4
Cr(50)/Si	10000	6,025	85	0,3
Cr(100)/Si	10000	5,22	181	0,2
V(50)/Si	10000	5,758	51,9	0,4
V(100)/Si	10000	5,758	102	0,3
Co(50)/Si	10000		36	0,4
Co(100)/Si	10000		68,6	0,2
Fe(50)/Si	10000		56,3	0,3
Fe(100)/Si	10000		107	0,2
Ni(50)/Si	10000		49,3	0,3
Ni(100)/Si	10000		99,3	0,2
Ta(50)/Si	10000	15,591	69	0,1
Ta(100)/Si	10000	8,22	184	0,1

TABLE 2.2 – Cibles minces élémentaires de 50 ou 100 nm sur un substrat de silicium.

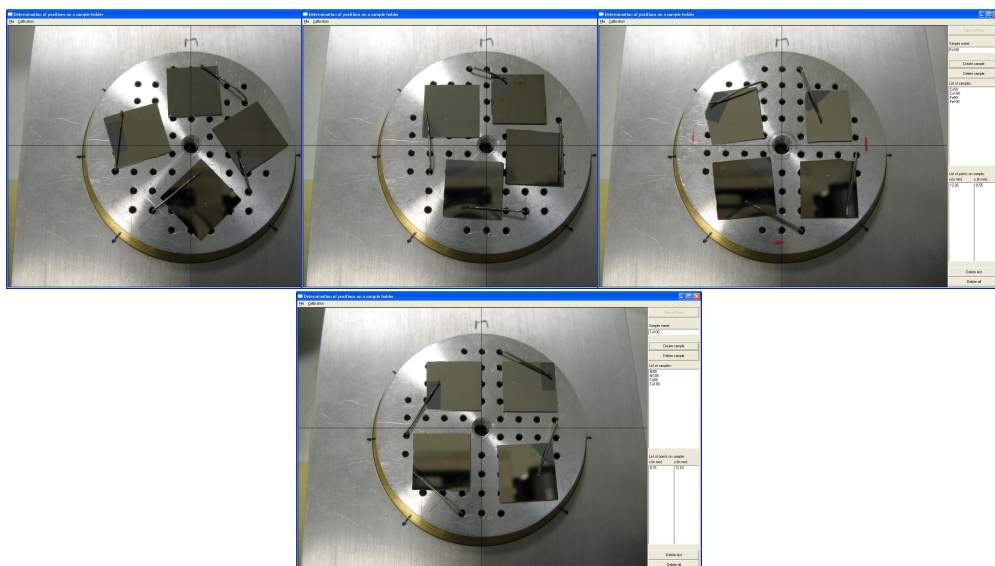


FIGURE 2.3 – Echantillons 2.

## Conclusion

Les résultats obtenus avec GONNY jouissent d'une excellente statistique donnant des erreurs inférieures au demi-pourcent. De plus, les simulations réalisées par SIMNRA correspondent avec une très bonne précision (non-quantifiable) aux données expérimentales, comme le montre par exemple le spectre de la cible Ni/Si à la figure 2.4.

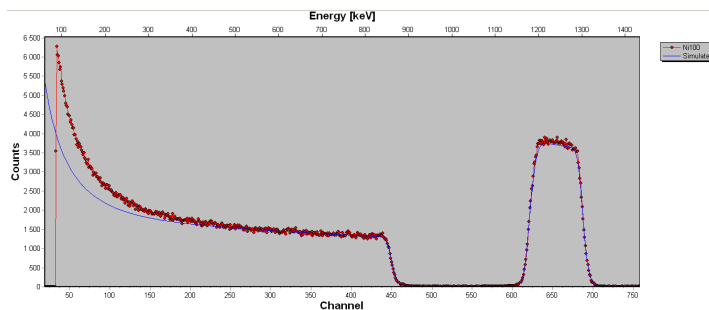


FIGURE 2.4 – Spectre et simulation de l'échantillon Ni/Si.

## Chapitre 3

# Calibration de la zone de travail de la ligne - Kanal 5 pour les méthodes PIXE/PIGE avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Calibration de l'énergie du nouvel accélérateur</b>	<b>142</b>
3.1.1	Choix de l'énergie d'analyse . . . . .	143
<b>3.2</b>	<b>Calibration pour des analyses PIXE quantitatives</b>	<b>145</b>
3.2.1	PIXE 1 : Matrice . . . . .	146
3.2.2	PIXE 2 : Trace . . . . .	155
<b>3.3</b>	<b>Calibration pour des analyses PIGE quantitatives</b>	<b>166</b>
3.3.1	Stratégie . . . . .	166
3.3.2	Calibration utilisée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV . . . . .	170
3.3.3	Calibration calculée avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV . . . . .	174
3.3.4	Comparaison des calibrations de 2008 et 2011 . .	180

---

L'Ionenstrahlzentrum du HZDR est actif depuis les 1990 dans le cadre de l'analyse archéométrique d'objets du patrimoine culturel grâce à son ancien accélérateur tandem de 5 MV et la zone de travail extraite détaillés précédemment. Suite à un refinancement, le laboratoire a obtenu les crédits pour

installer son nouvel accélérateur tandem de 6 MV pour remplacer l'ancien, déjà obsolète. Les expériences réalisées dans le cadre de cette thèse ont eu pour but de vérifier la possibilité d'utiliser ce nouvel accélérateur dans des conditions proches ou similaires à celles choisies lors de l'utilisation de l'ancien accélérateur pour les analyses par faisceaux d'ions extrait à l'air. Dans ce chapitre, la calibration des méthodes PIXE et PIGE est traitée.

### 3.1 Calibration de l'énergie du nouvel accélérateur

Pour permettre des performances correctes des analyses par faisceaux d'ions, une connaissance précise de l'énergie et de la dispersion en énergie du faisceau est nécessaire. Dans cet objectif, une calibration en énergie du nouvel accélérateur a été réalisée juste après son installation [59].

Cette calibration concerne la relation entre l'énergie des ions et la tension du terminal. La tension peut être stabilisée en utilisant soit un voltmètre-générateur, soit un signal de feedback provenant des fentes de stabilisation installées dans la cage de Faraday après l'aimant d'analyse à 90°.

En pratique, la calibration en énergie de l'accélérateur a été établie en se servant de la résonance étroite de la réaction nucléaire  $^1H(^{15}N, \gamma\alpha)^{12}C$ . Le faisceau d'ions négatifs de  $^{12}C^{15}N^-$  de 29 keV a été produit par la source Cs sputter en utilisant une cathode de cuivre remplie d'un mélange d'azote de sodium enrichi en azote-15 et de graphite. L'énergie des ions incidents a été balayée près de la résonance à 6,385 MeV, d'une largeur de 1,87 keV. Une galette de silicium ultra propre contenant plusieurs mono-couches de molécules d'eau absorbées en surface a été prise comme cible pour les mesures. Les rayons  $\gamma$  de 4,439 MeV émis ont été détectés par un scintillateur BGO associé à un photomultiplicateur. Le balayage fin de l'énergie des ions près de la résonance a été réalisé en modifiant la tension appliquée à la cible de silicium par pas dans une gamme de  $\pm 20$  kV. La mesure de l'énergie des ions a été stabilisée par l'utilisation des fentes.

Le graphique, à la figure 3.1, représentant le nombre de coups détectés par le scintillateur en fonction de la tension accélératrice, fournit les informations nécessaires pour définir l'énergie réelle et exacte du faisceau d'ions.

La largeur à mi-hauteur de la courbe (environ 15 keV) est déterminée par l'élargissement en énergie dû à l'effet Doppler, l'épaisseur de la couche contenant l'hydrogène, la diffusion de l'énergie dans cette couche et la dispersion en énergie du faisceau. En supposant la cible assez fine et en estimant l'influence de l'effet Doppler à 11 keV, la dispersion en énergie du faisceau peut



être calculée comme ne dépassant pas les 10 keV.

La courbe de calibration a été mesurée pour les états de charges  $Q$  de 1+, 2+, 3+, correspondant à des tensions du terminal  $T$  respectives de 4094 kV, 2492 kV et 1791 kV.

$$E = (29 + T) \frac{15}{27} + TQ \quad (3.1)$$

La déviation de la tension du terminal a été ajustée par une régression linéaire à environ -1,9%, ce qui correspond à une correction en énergie d'un facteur de 1,019. Cette déviation pourrait être réduite par un ajustement de la boucle de feedback du générateur haute tension.

L'expérience, réalisée dans un premier temps à la sortie de l'accélérateur, a été répétée à la sortie du deuxième aimant d'analyse pour vérifier le comportement de l'optique de faisceau. Les résultats obtenus sont en parfait accord et ne sont donc pas publiés ici par souci de non-redondance.

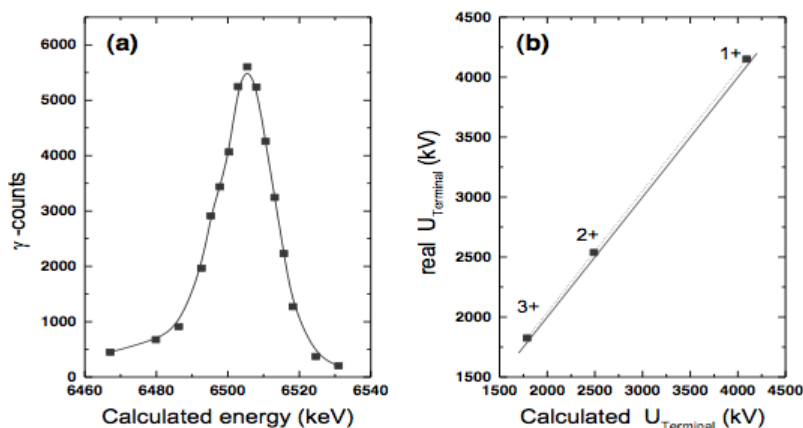


FIGURE 3.1 – Calibration en énergie du nouvel accélérateur.

### 3.1.1 Choix de l'énergie d'analyse

Le faisceau de proton de 4 MeV a été choisi comme compromis pour les analyses par faisceaux d'ions extraits. En réalité, l'énergie du faisceau extrait est diminuée par son passage et son interaction dans la fenêtre d'extraction

et l'atmosphère d'hélium : 4000 keV (faisceau) - 150 keV (absorption Havar + He) = 3850 keV.

Le choix s'est basé sur trois critères principaux :

- limiter le nombre de réactions nucléaires pour ne pas activer l'échantillon-cible ;
- maximiser les sections efficaces de production de rayons X pour les éléments allant du sodium à l'uranium ;
- maximiser les sections efficaces de production de rayons  $\gamma$  pour les éléments allant du bore au silicium.

Dans la pratique, le premier faisceau de la ligne-Kanal 5 de 4 MeV du nouvel accélérateur tandem de 6 MV a été extrait au début du mois de septembre 2011 avec les paramètres suivants :

<b>Tensions</b>	
Terminal	1982 kV
Eplucheur	6 kV
Source d'ions	30 kV
<b>Aimants</b>	
MPI 90°(après la source)	B = 63,565 mT
	I = 5,605 A
MPI 90°(après la source)	B = 63,565 mT
	I = 5,605 A
Premier aimant d'analyse 90° (pour monter)	B = 63,565 mT
	I = 5,605 A
Second aimant d'analyse 90° (pour dévier à gauche)	B = 277,676 mT (280,80 mT)
	I = 54,414 A (54,06 A)
Switch 60° (K5)	I = 37,183 (38,506 A)

TABLE 3.1 – Paramètres théoriques de l'accélérateur tandem de 6 MV pour un faisceau de protons de 4 MeV. Les valeurs entre parenthèses sont les valeurs réelles.

## 3.2 Calibration pour des analyses PIXE quantitatives

Contrairement au laboratoire de Liège, qui a pris le parti d'utiliser différents couples énergie/faisceau, les expériences réalisées à Dresden le sont dans des conditions identiques lors de toutes les différentes campagnes d'analyses. De ce fait, tous les paramètres de détection et d'acquisition peuvent être définis et fixés une seule fois au cours de la vie de l'accélérateur. Dans la pratique, trois échantillons de référence sont analysés pour vérifier cette calibration avant chaque journée d'expériences.

Ayant installé un nouvel accélérateur, le laboratoire allemand a dû réaliser cette calibration, qui a été un des objets de la nouvelle collaboration établie avec l'IPNAS.

La stratégie définie a pour objectif de déterminer la valeur du facteur de correction  $H$  et les valeurs des épaisseurs des filtres à utiliser dans le logiciel "Gupix". La notion de facteur de correction  $H$  permet d'introduire un paramètre expérimental pour la correction de la géométrie de détection. Elle sera discutée plus en détail dans le chapitre des mesures de sections efficaces de production de rayons X.

Le courant est limité par l'utilisation de fentes de manière à ne pas dépasser un taux de comptage de 1000 coups/s par les détecteurs X, ce qui permet de limiter le temps mort de la chaîne électronique et dès lors de garder une résolution convenable et d'éviter des artefacts sur les spectres.

La dose corrigée est calculée à partir du nombre de coups du preset et du temps mort de la chaîne d'acquisition :

$$Q = \frac{Preset}{1000} \frac{LiveTime}{RealTime}. \quad (3.2)$$

### 3.2.1 PIXE 1 : Matrice

Le détecteur dédié à la collection des rayons X de faibles énergies, c'est-à-dire inférieurs à environ 8 keV a d'abord été calibré.

#### Stratégie

Le facteur  $H$  est calibré comme étant la valeur moyenne des facteurs  $H$  des éléments de numéro atomique égal ou supérieur à celui du titane, de manière à obtenir une concentration moyenne de 100% pour l'ensemble de ces éléments. En effet, comme le montre la courbe d'efficacité d'un détecteur Si(Li) à la figure 3.2, il y a deux composantes distinctes qui régissent la détection. Pour ces éléments, les erreurs seront compensées par le facteur  $H$  tandis que pour les éléments plus légers, ce sont les valeurs des épaisseurs des filtres qui seront primordiales. Ces valeurs sont donc déduites de manière à obtenir une concentration moyenne de 100% pour les éléments légers. La valeur du facteur  $H$  trouvée précédemment sera utilisée lors du dépouillement.

Dans la pratique, outre les filtres correspondant à la présence d'air (3 mm) et d'hélium (30,5 mm) dans l'enceinte d'analyse, deux filtres doivent être considérés. Le premier consiste en un collimateur de tantale percé d'un trou d'un diamètre de 1 mm positionné pour limiter le nombre de rayons X à 1000 par seconde. Le deuxième, qui lui va faire l'objet d'une calibration, est un filtre de Mylar de quelques microns positionné pour limiter le nombre de rayons X collectés et éviter la diffusion de l'hélium à travers la fenêtre de béryllium du détecteur.

De plus, il a été décidé de ne pas tenir compte du sodium pour vérifier les valeurs des filtres en PIXE mais de se concentrer uniquement sur la PIGE pour cet élément.

La méthode de calibration tient également compte d'un dernier effet sur le chlore et le phosphore. En effet, l'atténuation dans la couche morte de surface du cristal de Si du détecteur va être la plus importante pour des éléments de numéros atomiques  $Z + 1$  et  $Z + 2$ , le phosphore et soufre. Le chlore, de numéro atomique  $Z + 3$ , est préféré au soufre en raison des échantillons-cibles disponibles. En raison de l'existence de cet effet, il est important de corriger la valeur de l'épaisseur de la couche morte du détecteur (qui augmente avec l'âge du détecteur) de manière à obtenir une concentration moyenne de 100% sur le chlore et le phosphore. Une fois le facteur  $H$ , l'épaisseur du filtre de Mylar et l'épaisseur de la couche morte connus, la moyenne des concentrations est vérifiée une dernière fois pour l'ensemble des éléments. Il

est judicieux de noter que tous ces calculs doivent être réalisés en tenant compte de la correction du temps mort sur la dose.

Remarque :

Dans la pratique, les échantillons composés de plusieurs éléments doivent être dépouillés en mode “trace” dans GupixWin afin de pouvoir définir la stœchiométrie correcte.

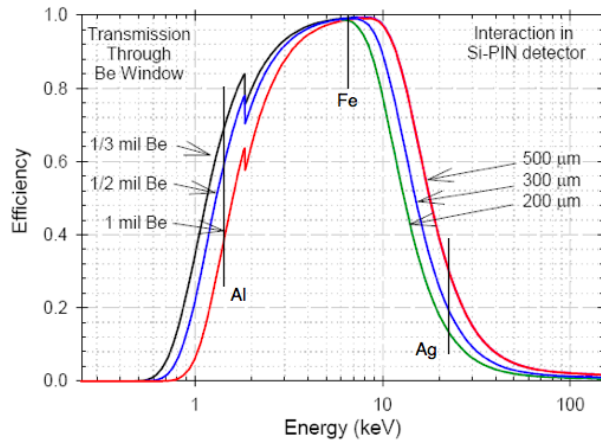


FIGURE 3.2 – Courbe d’efficacité d’un détecteur X Si(Li) [46].

### Vérification des paramètres de l’ancien accélérateur tandem de 5 MV

Lors de chaque analyse, les paramètres utilisés pour dépouiller les spectres, dans le cas de la méthode PIXE, sont vérifiés.

- Définition initiale des filtres.
  - Hélium : 30500  $\mu\text{m}$ .
  - Tantale : 1000  $\mu\text{m}$  (troué à 16%).
  - Mylar : 4,2  $\mu\text{m}$ .
  - Air : 3 mm.
- Valeur initiale du facteur de correction  $H$  : 6,1E-5.

La valeur du facteur de correction  $H$  est redéfinie de manière à obtenir une moyenne des concentrations des éléments Fe et Ag, calculées à partir des raies  $K$ , égale à 1. Pour des rayons X d'une telle énergie, l'effet sur la courbe d'efficacité est influencé principalement par l'épaisseur du cristal. La valeur de  $H$  tient compte de cet effet, d'où le choix de ces deux éléments pour vérifier ce paramètre.

Pour les échantillons épais du 15.09.2005 (présentés plus précisément dans le chapitre suivant), le logiciel Gupixwin permet de calculer avec ces paramètres et en tenant compte du temps mort pour corriger la dose :

$[Fe] = 99,8\%(\pm 0,2\%)$  et  $[Ag] = 100,9\%(\pm 2\%)$ . La moyenne devient donc  $\frac{[Fe]+[Ag]}{2} = 1,0035$ . Le facteur  $H$  devient dès lors égal à  $6,1E-5 \cdot 1,0035 = \mathbf{6,12E-5}$ .

La courbe d'efficacité du détecteur pour les rayons X de faible énergie est régie par l'absorption des rayons X par les différents filtres et fenêtres utilisés. Le calcul de la concentration d'un élément léger, tel l'Al, permet de vérifier et d'adapter la valeur de l'épaisseur du filtre de Mylar. Cette adaptation permet aussi de tenir compte de petites variations de l'énergie et du flux d'hélium.

$$[Al]_{4,2} = 97,4\%(\pm 0,6\%)$$

$$[Al]_{4,3} = 98,6\%(\pm 0,6\%)$$

$$[Al]_{4,4} = 100\%(\pm 0,6\%)$$

La valeur du filtre de Mylar est dès lors établie à **4,4  $\mu\text{m}$** .

## Calibration des paramètres du nouvel accélérateur tandem de 6 MV

Pour calibrer le dispositif PIXE 1 extrait pour l'ensemble de la gamme d'énergie des rayons X (1-30 keV), un corpus d'échantillons plus important a été analysé. Les tableaux 3.2 et 3.3 reprennent l'ensemble des 16 échantillons analysés dans deux configurations différentes. Ces deux configurations sont identiques pour la PIXE 1 et ne feront donc l'objet d'une discussion que dans la section dédiée à la PIXE 2.

Sans Ta		Fe	Ag	Al	Si	CaF2	Ti	Cr	Ni
	Courant (pA)	50	50	200	100	50	<50	<50	50
<b>PIXE 1</b>	Taux de comptage (cps/s)	800	300	500	800	900	1000	900	900
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,71302	9,90871	9,78873	9,72191	9,72939	9,67884	9,75437	9,69585
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)	Fermé	600			200	600	Fermé	Fermé
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	0	9,64505	9,96703	9,98661	9,24886	9,70160	0	0
<b>RBS-Dose</b>	Preset	10000	10000	10000	10000	10000	10000	10000	10000
Sans Ta		<b>GaAs</b>	<b>Ge</b>	<b>Nb</b>	<b>Mo</b>	<b>Al</b>	<b>NaCl</b>	<b>Cu</b>	<b>GaP</b>
	Courant (pA)	200	200	200	200	250	150	50	200
<b>PIXE 1</b>	Taux de comptage (cps/s)	700	1000	800	700	700	800	800	700
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,75375	9,70682	9,746403	9,70286	9,68861	9,73811	9,73051	9,74368
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)	Fermé	Fermé	Fermé	Fermé	Fermé	Fermé	Fermé	Fermé
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	0	0	0	0	0	0	0	0
<b>RBS-Dose</b>	Preset	10000	10000	10000	10000	10000	10000	10000	10000

TABLE 3.2 – Echantillons épais du 20.10.11 sans le diaphragme en Ta.

Avec Ta									
	Courant (pA)								
<b>PIXE 1</b>	Taux de comptage (cps/s)								
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )								
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)								
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )								
<b>RBS-Dose</b>	Preset								
Avec Ta									
	Courant (pA)								
<b>PIXE 1</b>	Taux de comptage (cps/s)								
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )								
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)								
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )								
<b>RBS-Dose</b>	Preset								

TABLE 3.3 – Echantillons épais du 20.10.11 avec le diaphragme en Ta.



Facteur de correction  $H$  :

L'ensemble des résultats dépouillés pour les éléments allant du titane (4,511 keV) à l'argent (22,16 keV) pour les raies K à l'aide du logiciel GupixWin a permis de déduire, comme le montre le tableau 3.4, un nouveau facteur de correction  $H$  de 6,474E-5. Ce paramètre permet d'obtenir une concentration moyenne de 100,14% pour l'ensemble de ces éléments.

Elément	$H$ (E-7)	Concentration (ppm)	Erreur (%)	H calc. (E-6)	H moyen (E-6)	Concentration (ppm)
FeK	610	1078000	0,2	65,60	64,74	1015000
FeK	610	1035000	0,2	63,01		975000
AgK	610	1103000	2	67,24		1034000
TiK	610	1043000	0,2	63,47		983000
CrK	610	1022000	0,2	62,20		963000
CrK	610	1014500	0,2	61,76		956000
NiK	610	1071000	0,3	65,25		1009000
NiK	610	1057000	0,3	64,40		996000
CuK	610	1069000	0,3	65,08		1007000
CuK	610	1055000	0,3	64,21		994000
GeK	610	1061000	0,4	64,66		999500
GeK	610	1097000	0,4	66,92		103000
NbK	610	1077000	1,1	65,65		1015000
NbK	610	1072000	1,1	65,27		1010000
MoK	610	1085000	1,2	66,09		1022000
MoK	610	1089000	1,1	66,24		1026000
GaK	610	736000	3,4	64,78		1002000
GaK	610	720000	3,9	63,36		980000
					Moyenne	1001000

TABLE 3.4 – Calcul du facteur  $H$  pour la PIXE 1 - 20.10.11.

Epaisseur du filtre de Mylar :

A partir de la nouvelle valeur du facteur de correction  $H$  de  $6,474E-5$ , une nouvelle valeur du filtre de Mylar a été déduite à l'aide des analyses réalisées sur l'aluminium et le silicium, comme le montre le tableau 3.5. Le filtre a désormais une épaisseur calculée de  $5,1 \mu\text{m}$ . L'ensemble des nouveaux paramètres donne alors une concentration moyenne de 100,02% pour ces éléments.

Eléments	Filtre Mylar ( $\mu\text{m}$ )	Concentration (ppm)
AlK	5,1	998000 ( $\pm 1\%$ )
AlK	5,1	1003500 ( $\pm 1\%$ )
SiK	5,1	999000 ( $\pm 0,6\%$ )
	Moyenne	1000200

TABLE 3.5 – Epaisseur du filtre de Mylar.

Epaisseur de la couche morte du cristal :

L'épaisseur de la couche morte du cristal de silicium a été évaluée à partir des spectres des échantillons de chlore et de phosphore. En utilisant les valeurs du facteur de correction  $H$  et de l'épaisseur du filtre de Mylar trouvées, la nouvelle valeur de l'épaisseur de la couche morte est déduite à  $6,5E-5 \text{ cm}$ . Comme le montre le tableau 3.6, la moyenne des concentrations est de 99,94%.

Cependant, les variations pour les deux éléments légers sont importantes. Il conviendra d'être prudent lors de la détection de ces éléments au cours des analyses d'échantillons de compositions inconnues. Le cas particulier du gallium permet de vérifier que la valeur de cette épaisseur n'a aucune influence pour les éléments plus lourds.

Vérification du filtre de Mylar :

Afin de s'assurer que la nouvelle définition de l'épaisseur de la couche morte du cristal n'influence pas de manière trop importante les paramètres de détection des éléments légers, l'épaisseur du filtre de Mylar a été vérifiée à l'aide de l'aluminium. Le tableau 3.7 met en évidence la nécessité d'une légère correction de cette épaisseur pour obtenir une concentration de 1. Dorénavant l'épaisseur du filtre de Mylar sera de  $4,9 \mu\text{m}$ .

Eléments	Couche morte (E-5 cm)	Concentration (ppm)
P	4	995000 ( $\pm 1, 1\%$ )
Ga	4	999000 ( $\pm 0, 4\%$ )
Cl	4	918000 ( $\pm 3, 5\%$ )
	Moyenne	971000
P	6,5	1052000 ( $\pm 1, 1\%$ )
Ga	6,5	1000000 ( $\pm 0, 4\%$ )
Cl	6,5	946000 ( $\pm 3, 5\%$ )
	Moyenne	999500

TABLE 3.6 – Epaisseur de la couche morte du cristal .

Eléments	Filtre Mylar ( $\mu\text{m}$ )	Concentration (ppm)
AlK	5,1	1020000 ( $\pm 1, 1\%$ )
AlK	4,9	998000 ( $\pm 1, 1\%$ )

TABLE 3.7 – Vérification du filtre de Mylar .

Vérification avec les nouveaux paramètres :

Finalement, l'ensemble des nouveaux paramètres permet de déduire une concentration moyenne de 100,015% pour l'ensemble des éléments analysés en PIXE 1, comme le montre le tableau 3.8.

Le tableau 3.9 reprend le récapitulatif des nouveaux paramètres définis par GupixWin pour le nouvel accélérateur 6 MV pour la PIXE 1. Il les compare également avec les résultats obtenus avec le logiciel GupixDos et de surcroît pour l'ancien accélérateur.

Le facteur  $H$  a subi une évolution de 5,9% entre les deux accélérateurs et sa valeur reste similaire pour les deux versions du logiciel de dépouillement.

L'épaisseur du filtre de Mylar a augmentée d'environ 10,2% (pour le même filtre utilisé) et les valeurs sont en parfait corrélation pour les deux versions du logiciel. L'épaisseur de la couche morte du cristal de silicium a un comportement plus variable. Alors que pour les paramètres de l'ancien accélérateur, les deux logiciels utilisaient la même valeur, les nouveaux résultats prônent l'utilisation de deux valeurs distinctes pour le nouvel accélérateur. Dans le cas de GupixDos, l'augmentation de l'épaisseur est de 28% et est en accord avec un vieillissement normal du détecteur. Par contre, dans le cas de GupixWin, l'augmentation est de 72%. Les résultats donnés par les deux logiciels

Elément	Concentration (ppm)
FeK	1018000
FeK	978000
AgK	1035000
TiK	996000
CrK	969000
CrK	962000
NiK	1009000
NiK	996000
CuK	1008000
CuK	993000
GeK	997000
GeK	1032000
NbK	1011500
NbK	1007000
MoK	1019000
MoK	1022000
GaK	1000000
PK	1052000
GaK	978000
PK	1008000
AlK	992500
AlK	998000
SiK	999500
ClK	946000
CaK	977500
Moyenne	1000200

TABLE 3.8 – Concentrations avec les nouveaux paramètres.

présentent une différence de 61,5%. Cette différence peut en partie être expliquée par l'introduction de nouvelles bases de données pour l'atténuation des rayons X dans le silicium dans le code du logiciel, comme le montre le tableau 3.10. Cependant les variations pour le chlore et le phosphore sont de maximum 6,4%. Il subsiste donc une zone d'ombre inexpliquée. Finalement, les paramètres d'acquisition pour les deux logiciels sont désormais calibrés pour l'analyse PIXE 1 en faisceaux extraits.

	5 MV		6 MV	
	GupixDos	GupixWin 09	GupixDos	GupixWin 09
$H$	6,1E-5	6,12E-5	6,482E-5	6,474E-5
Filtre Mylar ( $\mu\text{m}$ )	4,4	4,4	4,9	4,9
Couche morte (cm)	-1,8E-5	-1,8E-5	-2,5E-5	-6,5E-5

TABLE 3.9 – Récapitulatif des paramètres.

	Atténuation ( $\text{cm}^2/\text{g}$ )		
	GupixDos	GupixWin 09	Delta (%)
Al in Si	533,2	548,2	2,74
Si in Si	346,3	358,8	3,48
P in Si	2927,6	2751	<b>-6,42</b>
S in Si	2000,8	2022	1,05
Cl in Si	1400,9	1432	<b>2,17</b>
K in Si	728,8	746,3	2,345
Ca in Si	539,2	560,5	3,8

TABLE 3.10 – Atténuation des rayons X dans le silicium.

### 3.2.2 PIXE 2 : Trace

Le détecteur dédié à la collection des rayons X de plus hautes énergies, c'est-à-dire supérieures à environ 8 keV a ensuite été calibré.

#### Stratégie

D'une manière assez similaire au détecteur PIXE 1, le facteur de correction  $H$  est calculé pour obtenir une concentration moyenne de 100% sur les éléments de numéros atomiques égaux ou supérieurs à celui du nickel.

Les épaisseurs des filtres sont ensuite calculées avec les éléments plus légers, c'est-à-dire le chrome et le fer, de manière à obtenir une concentration moyenne de 100% pour ces éléments en utilisant le nouveau facteur  $H$ . Dans la pratique, outre les filtres correspondant à la présence d'air (28 mm) et d'hélium (17 mm) dans l'enceinte d'analyse, un filtre en acrylique de l'ordre du millimètre doit être considéré. Ce dernier, qui fera l'objet d'une calibration, est positionné pour s'affranchir des rayons X issus des éléments légers et limiter le taux de comptage à 1000 coups par seconde.

Une fois le facteur  $H$  et l'épaisseur du filtre d'acrylique connus, la moyenne des concentrations est vérifiée une dernière fois pour l'ensemble des éléments.

Il est judicieux de noter que tous ces calculs doivent être réalisés en tenant compte de la correction du temps mort sur la dose.

Les tableaux 3.2 et 3.3 introduits à la section précédente présentaient deux configurations d'analyses différentes pour la méthode PIXE 2 extraite. L'angle solide de détection et la surface active du cristal du détecteur X dédié à la PIXE 2 sont plus importants que ceux du détecteur PIXE 1. La surface maximale active donne un rapport de 6,4 entre les deux détecteurs à l'avantage du détecteur PIXE 2 ( $80 \text{ mm}^2$ ). Alors que le détecteur PIXE 1 était déjà collimaté pour éviter un taux de comptage supérieur à 1000 coups par seconde (le détecteur X peut en effet être rapidement saturé à cause des sections efficaces de production de rayons X importantes des éléments légers). Le détecteur PIXE 2 n'a pas ce problème puisqu'il est légèrement reculé et qu'il ne jouit pas d'une enceinte d'hélium parfaitement contrôlée. Celui-ci étant dédié à la détection des éléments lourds, les filtres d'acrylique et d'air atténuent quasi totalement l'intensité des rayons X émis par les éléments légers.

Par contre, le détecteur PIXE 2 peut être saturé par les rayons X émis par les éléments lourds, par exemple lorsque le courant d'analyse augmente ou que la matrice de la cible est essentiellement composée d'éléments lourds. Pour contrer cet effet, il est possible de positionner un diaphragme en tantale percé d'un trou de 2 mm de diamètre devant le filtre d'acrylique du détecteur X.

Des expériences sans et avec ce diaphragme (Ta) ont été réalisées afin de calibrer les paramètres du détecteur pour les deux configurations possibles.

### Vérification des paramètres de l'ancien accélérateur tandem de 5 MV

Lors de chaque analyse, les paramètres utilisés pour dépouiller les résultats sont vérifiés.

- Définition initiale des filtres.
  - Hélium :  $17000 \text{ } \mu\text{m}$ .
  - Acrylique :  $1265 \text{ } \mu\text{m}$ .
  - Air : 28 mm.
- Valeur initiale du facteur de correction  $H$  : 3,521E-4.

Le facteur  $H$  est vérifié, pour les échantillons épais analysés du 15.09.2005 en calculant la concentration de la cible épaisse d'Ag à partir des raies K,  $[Ag] = 101,9\%(\pm 0,5\%)$ .

La valeur de H devient  $3,52\text{E-}4,1,019 = \mathbf{3,59\text{E-}4}$  pour une concentration en argent de  $[Ag] = 99,9\%$ .

Le protocole pour vérifier la valeur du filtre d'acrylique testé lors de ces expériences, est plus compliqué et basé sur le traitement d'échantillons supplémentaires réalisés le 25.07.05 (échantillons présentés plus précisément dans la section suivante au tableau 4.3). Ceux-ci sont des cibles minces élémentaires déposées sur un substrat épais de carbone.

Le carbone, étant invisible par la méthode PIXE, le mode "Layer" inclut dans GupixWin ne peut pas être utilisé. Le mode "intermediate" correspond plus à la philosophie correcte [60].

L'idée est de déterminer l'épaisseur des cibles minces avec le détecteur PIXE 1 et ensuite d'utiliser ces épaisseurs dans les paramètres de dépouillement du détecteur PIXE 2 et de faire varier l'épaisseur du filtre d'acrylique afin d'obtenir une concentration de 1 pour tous les éléments.

Le logiciel détermine des épaisseurs pour le détecteur PIXE 1 :

- $86,7 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \pm 1,3\%$  de Ni, ce qui correspond à une épaisseur de  $97,5 \text{ nm}$  à une densité de  $8,9 \text{ g}/\text{cm}^3$ .
- $108 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \pm 7\%$  de Mo, ce qui correspond à une épaisseur de  $106,1 \text{ nm}$  à une densité de  $10,21 \text{ g}/\text{cm}^3$ .
- $43,65 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \pm 1,4\%$  de Fe, ce qui correspond à une épaisseur de  $55,5 \text{ nm}$  à une densité de  $7,87 \text{ g}/\text{cm}^3$ .

GupixWin détermine pour la PIXE 2 une concentration  $[\text{Ni}]$  de  $120\%$  avec la valeur initiale du filtre pour une épaisseur de  $86,7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . L'épaisseur du filtre en acrylique devient alors  $1265/1,2 = 1054 \mu\text{m}$ .

La concentration  $[\text{Mo}]$  pour une épaisseur de  $108 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  est de  $99,5\%$  et la concentration  $[\text{Fe}]$  pour une épaisseur de  $43,7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  est de  $100,9\%$  avec cette nouvelle valeur.

Une valeur moyenne du filtre d'acrylique est dès lors calculée à  $\mathbf{1055 \mu\text{m}}$ . Les concentrations finales sont  $[\text{Ni}] = 99,5\% \pm 0,35\%$ ,  $[\text{Mo}] = 99,5\% \pm 1\%$  et  $[\text{Fe}] = 100,4\% \pm 0,5\%$ .

Il apparaît ici une variation importante de la valeur du filtre, de  $1245$  à  $1055 \mu\text{m}$ . Cette différence s'explique par la version du logiciel Gupix utilisée. En effet, la définition de la composition de la fenêtre d'acrylique a été mise à jour entre la version GupixDos et la version GupixWin.

### Calibration des paramètres du nouvel accélérateur tandem de 6 MV

Afin de calibrer au mieux les deux configurations du détecteur X, des expériences supplémentaires ont été réalisées sur deux échantillons épais et sur deux échantillons minces déposés sur un substrat de silicium. Les paramètres des expériences sont listés au tableau 3.11. Les résultats associés à ces expériences seront accompagnés d'un astérisque dans les divers tableaux suivants.

Sans Ta		<b>Ag*</b>	<b>Mo*</b>	<b>Fe/C*</b>	<b>Au/C*</b>
	Courant (pA)	50	50	300	300
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)	900	1000	200	300
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,49006	9,47178	9,901630	9,822390
<b>RBS-Dose</b>	Preset	10000	10000	10000	10000
Avec Ta		<b>Ag*</b>	<b>Mo*</b>	<b>Fe/C*</b>	<b>Au/C*</b>
	Courant (pA)	200	400	200	200
<b>PIXE 2</b>	Taux de comptage (cps/s)	200	500	20	40
	Q ( $\mu C$ )( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,5\%$ )	9,89740	9,73477	59,94052	59,87246
<b>RBS-Dose</b>	Preset	10000	10000	60000	60000

TABLE 3.11 – Echantillons épais du 04.11.11 avec et sans le diaphragme en Ta.

#### Dispositif avec le diaphragme en Ta :

Facteur de correction  $H$  :

Pour la première configuration du dispositif, avec le diaphragme en tantale devant le détecteur, les spectres ont été dépouillés en utilisant les résultats trouvés lors des expériences réalisées avec l'ancien accélérateur de 5 MV. Le tableau 3.12 reprend les paramètres et les résultats du dépouillement. Un facteur de 0,9805 est déduit, corrigeant ainsi le facteur de correction  $H$  pour obtenir une concentration moyenne de 100% au lieu des 98,05% calculés pour les échantillons allant du nickel à l'argent. La valeur du facteur  $H$  passe alors de 2,221E-5 à  $2,221.0,9805 = 2,178E-5$  et est arrondie à 2,2E-5 par le logiciel.



Elements	$H$ (E-5)	Filtre ( $\mu\text{m}$ )	Concentration (ppm)
Ni	2,221	1055	1002000
Cu	2,221	1055	986000
Ga	2,221	1055	942000
Ge	2,221	1055	988000
Nb	2,221	1055	981000
Mo	2,221	1055	987000
Ag*	2,221	1055	969000
Mo*	2,221	1055	989000
		Moyenne	980600

TABLE 3.12 – Facteur de correction  $H$  pour la configuration avec le diaphragme en Ta.

Epaisseur du filtre d'acrylique :

Avec la nouvelle valeur du nouveau facteur de correction  $H$ , l'épaisseur du filtre d'acrylique est déduite à partir des spectres des échantillons du chrome et du fer pour les raies  $K$ .

Comme le montre le tableau 3.13, deux valeurs de l'épaisseur du filtre ont été envisagées.

La première valeur de 1040  $\mu\text{m}$  permet de calculer une concentration moyenne de 100,2% et devrait donc à priori être la valeur du filtre à utiliser. Cependant la vérification des concentrations moyennes calculées avec l'ensemble des échantillons, au tableau 3.14, suggère qu'un filtre plus important pourrait également être utilisé et donnerait de meilleurs résultats. Pourtant, la moyenne des concentrations calculées avec un filtre acrylique de 1045  $\mu\text{m}$  est de 101,2%, c'est-à-dire plus éloignée des 100%, pour les deux éléments pris en compte. Mais si l'ensemble des échantillons est envisagé, la concentration passe alors à 98,7% au lieu des 98,4% calculés avec le filtre le plus fin.

En conclusion, l'épaisseur sera choisie à 1045  $\mu\text{m}$ , tout en tenant compte qu'elle puisse être fixée à une valeur légèrement inférieure au cas où les résultats des échantillons de référence utilisés en préambule des futures expériences ne seraient pas en accord avec les concentrations à trouver.

Elements	$H$ (E-5)	Filtre ( $\mu\text{m}$ )	Concentration (ppm)
Fe	2,2	1040	996000
Cr	2,2	1040	1008000
		Moyenne	1002000
Fe	2,2	1045	1003000
Cr	2,2	1045	1020000
		Moyenne	1012000

TABLE 3.13 – Epaisseur du filtre d'acrylique.

Vérification avec les nouveaux paramètres :

Elements	$H$ (E-5)	Filtre	Concentration (ppm)
Fe	2,2	1045	1003500
Cr	2,2	1045	1020000
Ni	2,2	1045	995000
Cu	2,2	1045	975000
Ga	2,2	1045	947000
Ge	2,2	1045	980000
Nb	2,2	1045	983000
Mo	2,2	1045	993000
		Moyenne	987000
Fe	2,2	1040	996500
Cr	2,2	1040	1008000
Ni	2,2	1040	990000
Cu	2,2	1040	972000
Ga	2,2	1040	944000
Ge	2,2	1040	985000
Nb	2,2	1040	983000
Mo	2,2	1040	992500
		Moyenne	984000

TABLE 3.14 – Vérification des paramètres pour la configuration avec le diaphragme en Ta.

### Dispositif sans le diaphragme en Ta :

Facteur de correction  $H$  :

Le facteur de correction  $H$  pour la deuxième configuration du dispositif, sans le diaphragme en Ta, a été calculé avec les échantillons d'argent et de molybdène du 04.11.11. A partir de la valeur  $H$  établie avec l'accélérateur de 5 MV et l'épaisseur du filtre d'acrylique définie précédemment dans la configuration sans diaphragme en Ta, le tableau 3.15 met en évidence une correction d'un facteur de 1,0639. L'ancienne valeur de 34,29E-5 passe alors à 36,481E-5, arrondie à 36,5E-5 par GupixWin, pour passer d'une concentration moyenne de 106,4% à 99,6%.

Elements	$H$ (E-5)	Filtre	Concentration (ppm)	H (E-5)	Concentration (ppm)
AgK	34,29	1045	1038000	36,5	972000
MoK	34,29	1045	1090000	36,5	1020000
		Moyenne	1064000		996000

TABLE 3.15 – Facteur de correction  $H$  pour la configuration sans le diaphragme en Ta.

### Relation entre les deux configurations, avec et sans le diaphragme en Ta :

Un bon moyen de vérifier la justesse et la véracité des valeurs des facteurs de correction  $H$  pour les deux configurations avec et sans le diaphragme en Ta a été mis en place.

En effet, le facteur  $H$  tient essentiellement compte de la correction de la géométrie et donc de l'angle solide de détection. Le rapport des angles solides de détection des deux configurations doit donc être le même que celui des facteurs  $H$ .

Le rapport des angles solides a été calculé à partir des aires corrigées sous les pics des éléments utilisés dans les expériences du 04.11.11. Les aires brutes ont été corrigées par soustraction du bruit de fond et les aires nettes ont ensuite été corrigées par la dose réelle pour tenir compte du temps mort de l'électronique.

Deux géométries d'analyses différentes ont été envisagées :

- En supposant que les rayons X sont émis par tout le volume sondé, c'est-à-dire des cibles épaisses.

- En supposant que les rayons X sont uniquement émis par la surface, c'est-à-dire des cibles minces sur un substrat épais de carbone.

Dans un premier temps, les aires ont été calculées dans un logiciel de traitements de spectres (par exemple : Maestro (Ortec), Javaspectre (IPNAS), Pro fit, Plot n ROI (C2RMF)). Cependant, comme le facteur  $H$  dépend en réalité de la qualité de l'ajustement réalisé par le logiciel GupixWin, les aires ont ensuite été calculées également par le logiciel lui-même. Les aires ont été corrigées par le temps mort. Le tableau 3.16 reprend les aires corrigées pour les deux méthodes dans les deux configurations ainsi que leurs rapports pour les quatre échantillons.

Aires	Sans Ta		Avec Ta		Rapport	
Elément	Gupix	Pro fit	Gupix	Pro fit	Gupix	Pro fit
AgK	358000,	560000	21400	33000	16,75 ( $\pm 0,9\%$ )	17,02 ( $\pm 0,7\%$ )
MoK	1022000	1573000	60500	92500	16,88 ( $\pm 0,5\%$ )	17,02 ( $\pm 0,4\%$ )
				Moyenne	16,825	17,02
AuL/C	223500	281500	12200	15600	18,3 ( $\pm 0,3\%$ )	18,07 ( $\pm 0,3\%$ )
FeK/C	146000	230000	8350	12900	17,5 ( $\pm 1,3\%$ )	17,75 ( $\pm 1,1\%$ )
				Moyenne	17,9	17,91
				Moyenne	17,35	17,47

TABLE 3.16 – Rapport des aires corrigées.

La connaissance des deux rapports, des facteurs  $H$  et des aires corrigées, permet de comparer les deux configurations :

En ne tenant compte que des cibles épaisses analysées par GupixWin, le facteur  $H$  de la configuration sans le diaphragme en Ta devient, à partir du facteur  $H$  de la configuration avec le diaphragme en Ta, égal à  $16,825.2,2E-5 = 36,98E-5$ . Cette valeur est en bonne corrélation avec la valeur du facteur  $H$  calculée pour la configuration sans le diaphragme en Ta de  $36,5E-5$ . La valeur exacte devrait être égale à  $\frac{36,5}{2,2} = 16,59$ . La variation est donc de  $1,3\%$ .

Il est dès lors possible de conclure que les facteurs de corrections  $H$  calculés sont en adéquation avec la réalité.

Le tableau 3.17 reprend les valeurs finales des différents paramètres pour le détecteur PIXE 2 pour le nouvel accélérateur et les compare aux résultats obtenus précédemment avec l'ancien accélérateur et ceci pour les deux

versions du logiciel de dépouillement.

	5 MV		6 MV	
	GupixDos	GupixWin 09	GupixDos	GupixWin 09
$H$ sans Ta	34,29	35,9	36,48	36,5
$H$ avec Ta	2,221	2,221	2,194	2,2
Rapport $H$	15,44	16,16	16,63	16,59
Rapport des aires			16,76	16,81
Filtre acrylique ( $\mu\text{m}$ )	1265	1055	1265	1045

TABLE 3.17 – Récapitulatif des paramètres.

Avec le nouvel accélérateur, le facteur  $H$  a subi une augmentation de l'ordre de 1,6% pour la configuration sans le diaphragme en Ta (les résultats de GupixDos et GupixWin pour l'accélérateur de 5 MV n'ont pas été calculés à partir des mêmes données, il existe donc une variation possible) et de 1% pour la configuration avec le diaphragme en Ta. Cependant les deux versions du logiciel sont en excellent accord entre elles.

Le rapport des facteurs  $H$  a augmenté de 7,1% pour GupixDos et de 2,6% pour GupixWin. Le détecteur ayant été légèrement écarté de l'échantillon-cible, ces valeurs ne posent aucun problème.

Le rapport des aires corrigées varie de 0,3% entre les deux logiciels, c'est-à-dire de manière négligeable.

Par contre, comme il a été souligné, l'épaisseur du filtre d'acrylique a diminué de 21% entre les deux versions de Gupix, suite au changement de la définition de sa composition dans les bases de données du logiciel.

### Estimation de l'angle solide de détection

A partir des valeurs des facteurs de correction  $H$ , il est possible d'estimer l'angle solide de détection des rayons X pour le détecteur dédié à la PIXE 2. En effet, pour rappel, le rapport des facteurs  $H$ , sans et avec le diaphragme en Ta, donne le rapport des angles solides. Il suffit dès lors de calculer l'angle solide du dispositif avec le diaphragme pour déduire le second.

Le fichier de paramètres du détecteur (AP0det.dat) et les expériences nous donnent les informations suivantes :

- la distance de la cible au cristal : 50 mm ;
- l'épaisseur de la fenêtre de béryllium d'entrée : 25  $\mu\text{m}$  ;
- l'épaisseur de la couche d'or devant le cristal : 2  $\mu\text{m}$  ;
- l'épaisseur du filtre d'acrylique positionné entre le cristal et le diaphragme : 1045  $\mu\text{m}$  ;
- le diamètre intérieur du diaphragme : 2 mm.

A partir de ces données, et de la géométrie estimée du détecteur à la figure 3.3, une distance de 48,928 mm est calculée entre la cible et la fin du diaphragme.

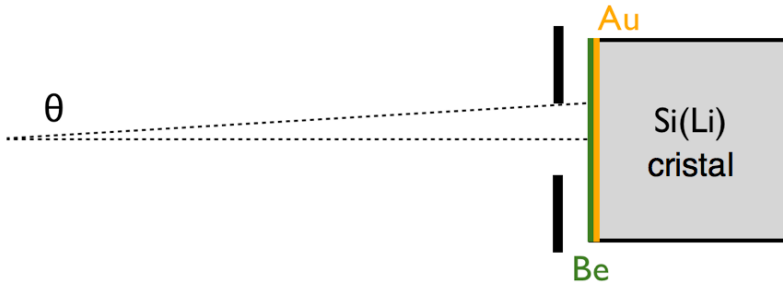


FIGURE 3.3 – Schéma du cristal du détecteur PIXE 2.

$$d\Omega = 2\pi(1 - \cos\theta) \quad (3.3)$$

$$\tan\theta = R/x \quad (3.4)$$

où  $x$  correspond à la distance et  $R$  au rayon.

$$\Omega = 4\pi \quad (3.5)$$

A partir des équations 3.3 à 3.5, dans le cas où le diaphragme est présent l'angle solide est déduit par :

$$tg\theta = \frac{1}{48,925} , R=1 \text{ et dès lors : } d\Omega(D.) = 1,312 \text{ msr et}$$

$$\frac{d\Omega(D.)}{\Omega} = 1,044\text{E-4.}$$

Il est alors possible de déduire la surface active du cristal dans cette configuration en augmentant la distance  $x$  à la distance cible-cristal tout en gardant le même angle solide de détection.

$$d\Omega(D.) = 2\pi(1 - \cos\theta_2), \text{ où } tg\theta_2 = \frac{R_2}{50}. \\ R_2 = 1,022 \text{ mm et donc la surface active du cristal vaut } 3,28 \text{ mm}^2.$$

La configuration de détection sans le diaphragme en Ta est calculée en multipliant l'angle solide avec diaphragme par le rapport des facteurs de correction  $H$ .

$$d\Omega(NoD.) = 1,312.17,35 = 22,76 \text{ msr et}$$

$$\frac{d\Omega(NoD.)}{\Omega} = 18,12\text{E-4.}$$

La surface active du cristal dans cette configuration peut alors être calculée également en augmentant la distance  $x$  à la distance cible-cristal tout en gardant le même angle solide de détection.

$$d\Omega(NoD.) = 2\pi(1 - \cos\theta_3), \text{ où } tg\theta_3 = \frac{R_3}{50}. \\ R_3 = 4,26802 \text{ mm et donc la surface active du cristal vaut } 57,23 \text{ mm}^2.$$

La valeur est inférieure à la valeur maximale donnée par le constructeur de  $80 \text{ mm}^2$ . Le détecteur pourrait donc être avancé pour augmenter l'angle solide de détection, cependant l'intensité des rayons X serait alors augmentée par la diminution de l'épaisseur d'air à traverser.

### 3.3 Calibration pour des analyses PIGE quantitatives

La méthode PIGE a fait l'objet d'une calibration pour les éléments légers étudiés. Malgré une section efficace de production de rayons X importante, les rayons X de faibles énergies sont atténués trop rapidement dans la matière dans la méthode PIXE. De ce fait, la concentration mesurée des éléments légers n'est représentative que des premières couches de l'échantillon-cible. Dans la méthode PIXE, ce fait, la profondeur de l'échantillon-cible sondée par ces éléments est fortement limitée à l'extrême surface. Les rayons X émis plus en profondeur n'ont pas assez d'intensité pour traverser l'échantillon cible et, si ils en sortent, l'atmosphère d'air et d'hélium, les filtres ou la fenêtre d'entrée du détecteur. De plus, l'efficacité du détecteur pour les rayons X d'énergies inférieures à 1 keV est proche de zéro et ne permet pas une calibration précise des paramètres de détection. Dans la méthode PIGE, les rayons  $\gamma$ , étant plus énergétiques, ne sont presque pas atténués par la matière et sont donc représentatifs de l'ensemble de l'épaisseur de l'échantillon sondé.

Si des laboratoires comme l'IPNAS ou le C2RMF ont décidé de s'intéresser presque exclusivement au sodium pour, par exemple, corriger les effets dus à la diffusion de l'élément dans une matrice vitreuse, au HZDR plusieurs éléments sont étudiés dans le cas des analyses de verres [61].

L'IPNAS participe, de plus, à un programme de l'agence internationale de l'énergie atomique (IAEA) pour la mesure des sections efficaces de production.

#### 3.3.1 Stratégie

L'atténuation des rayons  $\gamma$  étant négligeable entre deux échantillons de composition proche, il suffit de calculer et de comparer les aires nettes sous les pics (corrigées par le temps mort de l'électronique) pour en déduire la concentration de l'élément étudié à partir de références. Un logiciel a toute fois été compilé, mais il n'est pas utilisé ici [62].

La stratégie définie au HZDR est dès lors d'analyser des verres de composition et de concentration connues pour déduire les coefficients de proportionnalité. Les éléments étudiés sont dans ce cadre, en plus du sodium, le bore, l'aluminium, le magnésium et le silicium. Le tableau 3.18 reprend les différentes références ainsi que le pouvoirs d'arrêts calculés par deux versions du logiciel SRIM.



Concentration (at.%)						Pouvoir d'arrêt (eV/(10 <sup>15</sup> (atoms/cm <sup>2</sup> )))	
	B	Na	Al	Mg	Si	SRIM 00	SRIM 08
KW1		0	1,76	0	17,74		3,135
KW2		0,45	3,27	2,79	17,75	3,042	3,028
M1		2,25	0,68	1,73	18,55	3,044	3,029
M3		0	0	0	22,9	3,024	3,007
M4		0	1,03	1,95	16,13	3,158	3,146
GM2		13,21	0,34	0,27	22,2	2,888	2,834
DS8		14,67	0,29	0	24,28	2,829	2,771
Glaverbel		9,26	0,77	2,25	24,36	2,734	2,76
Tempax	6,69	2,47	1,05	0	25,5	2,626	2,597

TABLE 3.18 – Echantillons de référence.

Une méthode de dépouillement originale basée sur le silicium comme élément principal a été publiée [61]. Les cas des différents éléments se doivent d'être explicités un à un.

Le silicium :

La concentration en silicium d'un échantillon de verre est déduite en utilisant la corrélation linéaire qui existe entre l'aire normalisée sous le pic et la concentration en silicium divisée par le pouvoir d'arrêt du matériau.

$$Y_{Si}/\frac{CSi}{S} \quad (3.6)$$

Le sodium, l'aluminium, le bore :

La concentration de ces éléments dans un échantillon de verre est déduite en utilisant la corrélation linéaire qui existe entre l'aire normalisée sous le pic de l'élément d'intérêt divisée par l'aire normalisée sous le pic du silicium et la concentration de l'élément d'intérêt divisée par la concentration en silicium du matériau.

$$\frac{YX}{Y_{Si}}/\frac{CX}{CSi} \quad (3.7)$$

Le magnésium :

Le pic du magnésium pouvant être recouvert par un deuxième pic de l'aluminium, une correction de l'aire doit être effectuée. Pour se faire, le

rapport entre les aires normalisées des deux pics de l'aluminium doit être calculé. Ce rapport est aux alentours de 18% et se doit d'être vérifié sur un échantillon pur d'aluminium pour éviter toute interférence. Le pic de magnésium est alors corrigé en soustrayant les 18% du premier pic d'aluminium de l'échantillon d'intérêt. La concentration de magnésium dans un échantillon de verre est ensuite déduite en utilisant la corrélation linéaire qui existe entre cette aire normalisée divisée par l'aire normalisée sous le pic du silicium et la concentration de l'élément d'intérêt divisée par la concentration en silicium du matériau.

$$\frac{YMg^*}{YSi} / \frac{CMg}{CSi} \quad (3.8)$$

Le calcul d'erreur pour le silicium tient compte de la statistique du pic, de la statistique de la dose et d'une erreur systématique de 3% tenant compte des variations de géométrie et de l'énergie incidente des particules du faisceau. Le calcul d'erreur des autres éléments tient uniquement compte de la statistique du pic de silicium et de la statistique du pic de l'élément étudié. L'intérêt de la méthode consiste alors à utiliser conjointement les résultats de la PIGE, pour les éléments jusqu'au silicium, et de la PIXE, pour les autres éléments. A partir de la composition globale de l'échantillon vitreux, le pouvoir d'arrêt du matériaux est dès lors calculé. Et comme le montre le schéma à la figure 3.4, le nouveau pouvoir d'arrêt est introduit dans le calcul des concentrations. En effet, pour déduire la concentration en silicium, un pouvoir d'arrêt fictif de 3 eV/( $10^{15}$  (atomes/cm<sup>2</sup>)) est utilisé lors de la première itération de la méthode.

Le nouveau pouvoir d'arrêt est donc comparé au pouvoir d'arrêt fictif après la première itération pour tester la condition de sortie de la méthode. Si les pouvoirs d'arrêts ne sont pas en corrélation, le nouveau va alors servir de base pour la seconde itération. Par contre, s'ils sont en accord, les concentrations trouvées sont considérées comme exactes et la boucle est alors quittée. Les corrélations linéaires ont fait l'objet d'une nouvelle calibration avec le nouvel accélérateur et elles ont été comparées aux anciennes utilisées lors des expériences réalisées avec l'ancien accélérateur de 5 MV. De plus, afin de vérifier l'influence de l'utilisateur et du logiciel de traitement, différentes configurations ont été envisagées.

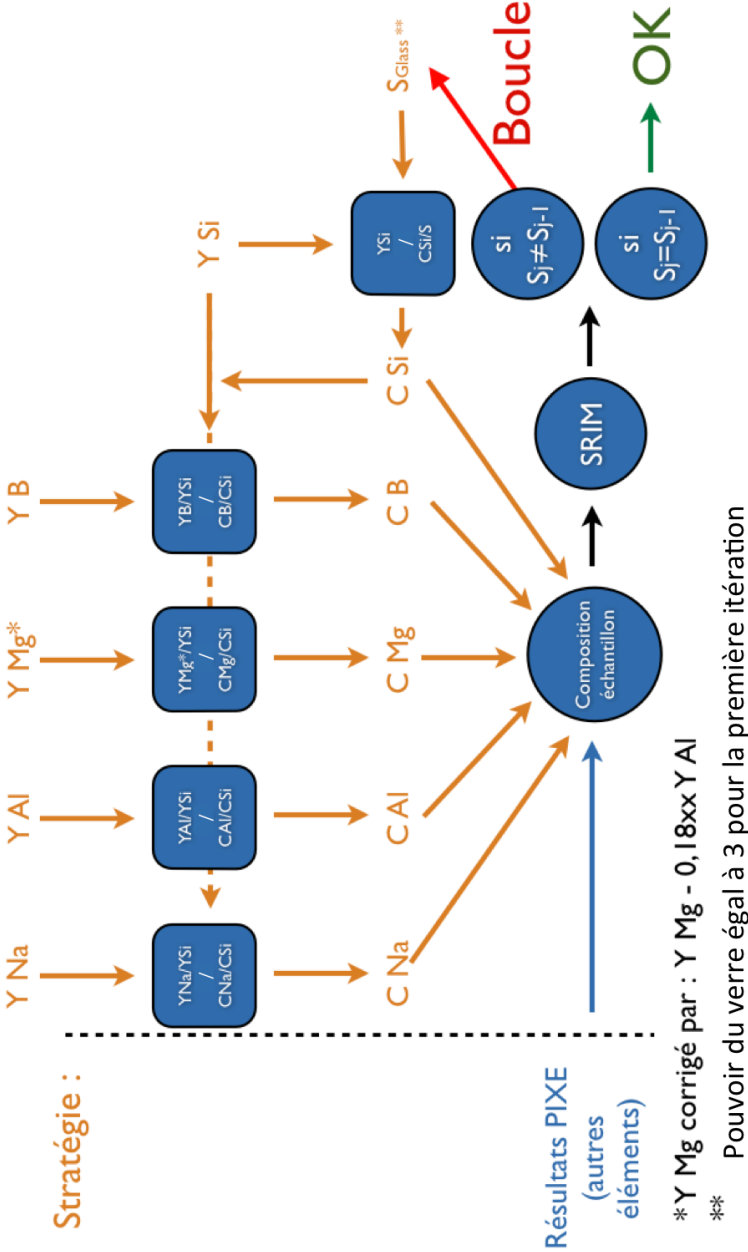


FIGURE 3.4 – Schéma de la stratégie PIGE.

### 3.3.2 Calibration utilisée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV

Le tableau 3.19 reprend les résultats des différents échantillons vitreux analysés le 23.10.08 pour les éléments légers lors de la calibration de la méthode PIGE. Les valeurs ont été calculées via le logiciel “Maestro” qui calcule automatiquement l'aire nette et l'erreur.

	KW2	M1	M3	GM2	Tempax	M4	DS8	Glaverbel
CSi/S	5,83	6,09	7,57	7,69	9,71	5,1	8,58	8,91
YSi	1,28	1,35	1,64	1,70	2,04	1,13	1,86	1,88
Erreur (%)	4	4	4	4	4	4	4	4
CNa/CSi	0,025	0,121		0,595	0,097		0,604	0,380
YNa/YSi	0,267	0,813		3,344	0,562		3,515	2,288
Erreur (%)	1,5	0,5		0,7	1		0,7	0,7
CAI/CSi	0,184	0,037		0,015	0,041	0,064	0,012	0,032
YAl/Si	0,330	0,071		0,034	0,064	0,117	0,023	0,038
Erreur (%)	1,4	2,4		2,9	2	2,15	3,00	2,6
CMg/CSi	0,157	0,094		0,012		0,121		0,093
YMg/YSi	0,082	0,062		0,0095		0,081		0,054
Erreur (%)	1,41	2,02		1,220		2,15		2,28
CB/CSi					0,262			
YB/YSi					0,305			
Erreur (%)					1,15			

TABLE 3.19 – Traitement du 23.10.08.

Le tableau 3.20 reprend les différentes corrélations linéaires calculées pour les éléments légers. Ces corrélations correspondent aux carrés bleus sur le schéma de la méthode. Deux configurations de l'erreur, absolue ou relative, ont été envisagées pour ajuster les données dans un logiciel d'ajustement (Origin ou Pro Fit).

Les variations entre les deux configurations sont relativement négligeables (de 0,02 à 0,36%) mais pour le magnésium, la différence est de 4,2%. La valeur de correction du pic a été calculée à 18,6% comme indiqué entre parenthèses dans le tableau. Il s'agit donc de s'assurer de bien employer la même méthode tout au long des différentes expériences et calibrations. Qu'il s'agisse des régions d'intérêts des pics, du logiciel de traitement ou du choix du type d'erreur.

Les figures 3.5 à 3.9 reprennent les graphiques correspondants aux ajustements des corrélations linéaires calculées en 2008.

Elément	Erreur	Valeur du fit	Comparaison
Si	Erreur absolue	$0,216 \pm 0,002$	
	Erreur relative	$0,216 \pm 0,002$	0,023%
Na	Erreur absolue	$5,8 \pm 0,007$	
	Erreur relative	$5,79 \pm 0,1$	0,16%
Al	Erreur absolue	$1,79 \pm 0,07$	
	Erreur relative	$1,78 \pm 0,05$	0,365%
Mg	Erreur absolue	$0,57 \pm 0,07$	(0,186)
	Erreur relative	$0,59 \pm 0,03$	4,2%
B		1,165	

TABLE 3.20 – Corrélations linéaires avec l’ancien accélérateur 5 MV.

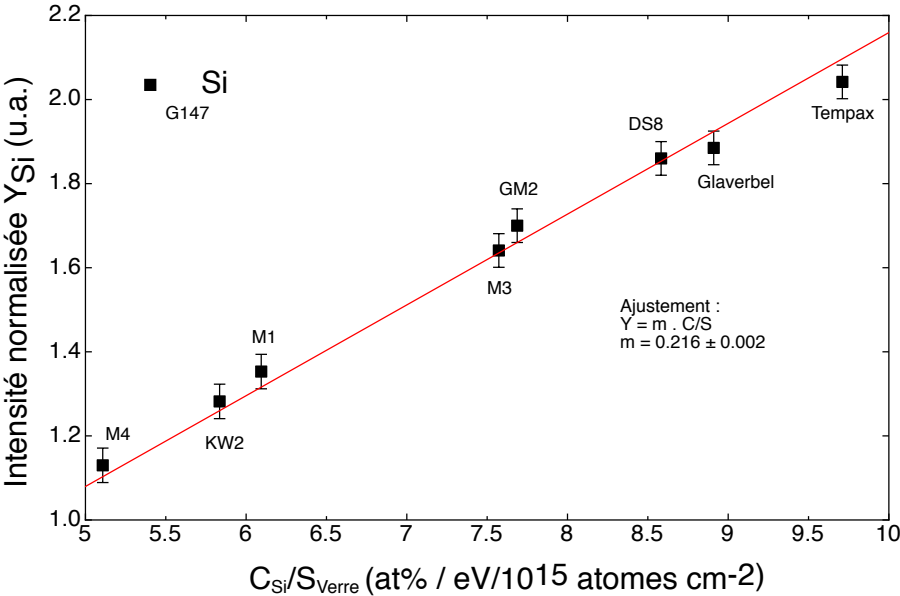


FIGURE 3.5 – Corrélation linéaire du silicium en 2008.

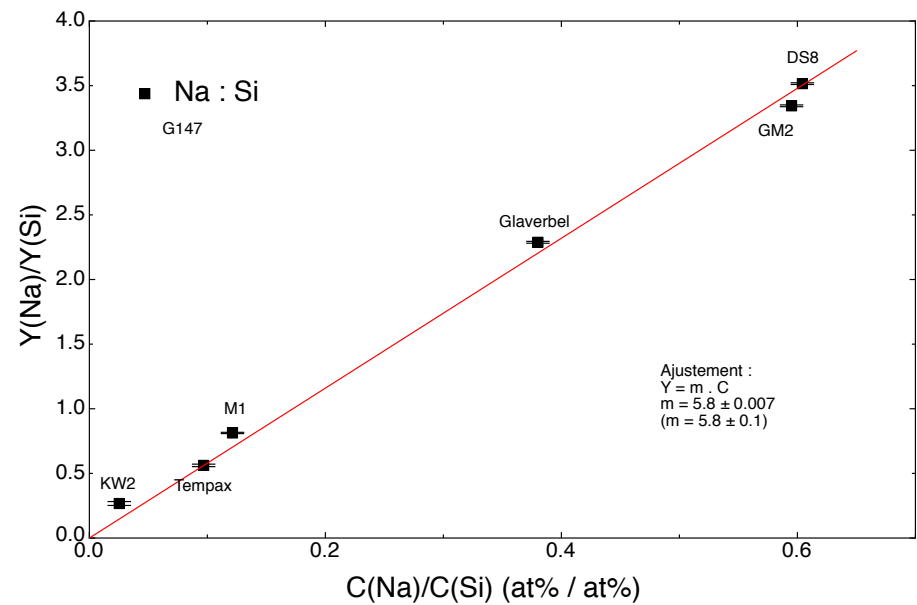


FIGURE 3.6 – Corrélation linéaire du sodium en 2008.

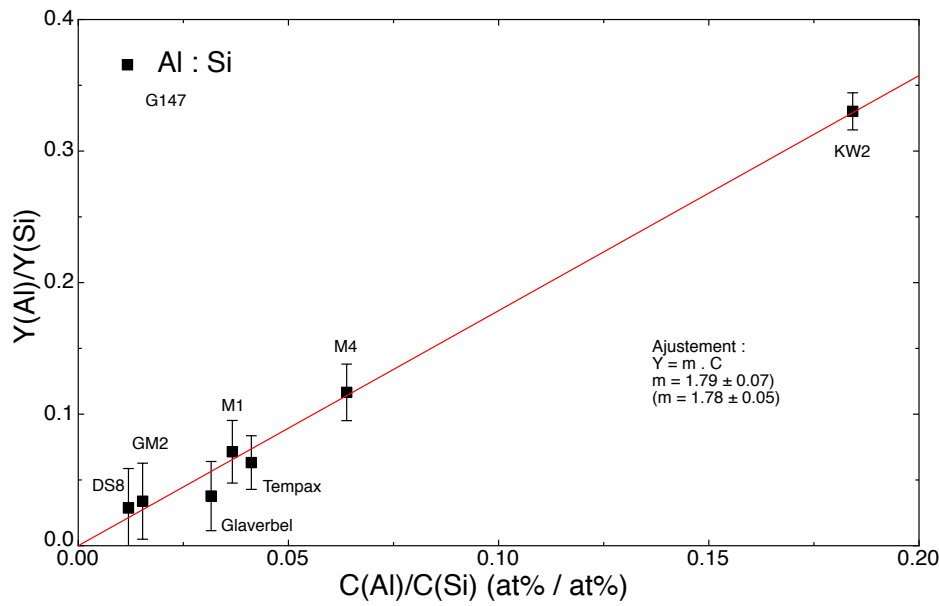


FIGURE 3.7 – Corrélation linéaire de l'aluminium en 2008.

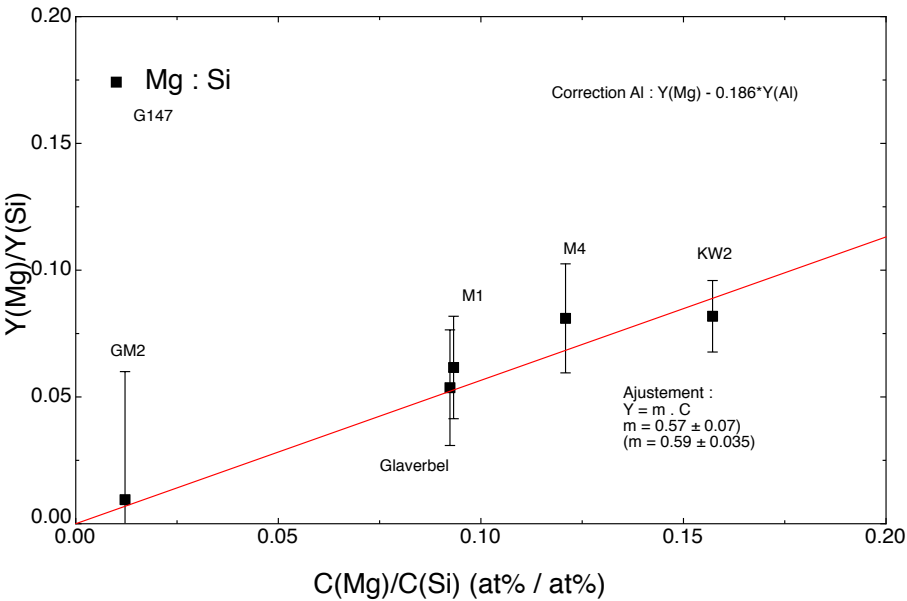


FIGURE 3.8 – Corrélation linéaire du magnésium en 2008.

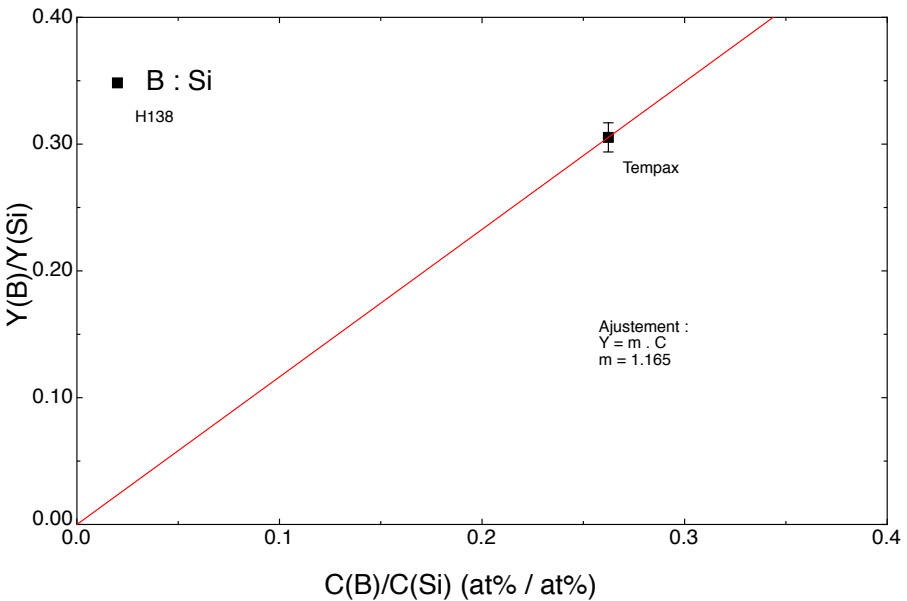


FIGURE 3.9 – Corrélation linéaire du bore en 2008.

### 3.3.3 Calibration calculée avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV

Suite à l'installation du nouvel accélérateur tandem de 6 MV, la calibration des corrélations linéaires a dû être refaite en 2011. Le tableau 3.21 reprend la liste des échantillons analysés avec les paramètres d'acquisition. L'échantillon KW1 a été ajouté à la liste des cibles de référence.

Sans Ta		M3	GM2	DS8	M4	KW2
	Courant (pA)	250	50	200	100	200
PIGE	Taux de comptage (cps/s)	600	500	1000	300	700
	Real time (s)	1291,16	2845,8	1327,5	2912,7	1039,2
	Live time (s)	1264,22	2778,92	1270,14	2871,14	1010,7
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 0,6\%$ )	29,37405	29,29496	28,70372	29,57194	29,17725
RBS-Dose	Preset	30000	30000	30000	30000	30000

Sans Ta		Glaverbel	Tempax	M1	KW1
	Courant (pA)	200	200	200	200
PIGE	Taux de comptage (cps/s)	1200	1000	500	450
	Real time (s)	1095,68	977,54	1283,98	1440,76
	Live time (s)	1049,66	940,34	1252,56	1411,46
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 0,6\%$ )	28,73996	28,85835	29,26587	29,38990
RBS-Dose	Preset	30000	30000	30000	30000

TABLE 3.21 – Echantillons du 24.10.11.

Le tableau 3.22 reprend les résultats obtenus avec le logiciel “Maestro” pour les expériences de 2011. Les mêmes expériences ont également été dépouillées via le logiciel “Plot n ROI”. Si le premier logiciel calcule automatiquement les erreurs, ce n'est pas le cas du second. Les erreurs ont dès lors été calculées à partir de la formule 3.9.

$$\sigma_S = \sqrt{(G + (\frac{N}{2n})^2 \cdot (B1 + B2))} \quad (3.9)$$

où  $\sigma_S$  est l'erreur statistique sur le pic,  $G$  est l'aire totale du pic,  $N$  est le nombre de canaux,  $n$  est le nombre de canaux à gauche et à droite du pic pour calculer le bruit de fond,  $B1$  est le bruit de fond moyen des  $n$  canaux à gauche du pic et  $B2$  est le bruit de fond moyen des  $n$  canaux à droite du pic.



	KW1	KW2	M1	M3	M4	GM2	DS8	Glaverbel	Tempax
CSi/S	5,66	5,86	6,125	7,615	5,13	7,835	8,762	8,823	9,82
YSi	1,22	1,25	1,30	1,623	1,095	1,69	1,825	1,863	2,055
Erreur	0,05	0,05	0,05	0,065	0,045	0,07	0,075	0,075	0,08
CNa/CSi		0,025	0,12			0,595	0,604	0,38	0,097
YNa/YSi		0,266	0,81			3,285	3,468	2,257	0,55
Erreur		0,005	0,01			0,025	0,024	0,017	0,006
CAI/CSi	0,100	0,184	0,037		0,064	0,015	0,012	0,031	0,041
YAl/Si	0,200	0,334	0,072	0,0065	0,118	0,031	0,027	0,04	0,058
Erreur	0,004	0,005	0,003	0,0015	0,004	0,002	0,002	0,002	0,002
CMg/CSi		0,157	0,093		0,121	0,012		0,09	
YMg/YSi		0,0835	0,064		0,079	0,013		0,055	
Erreur		0,0015	0,0025		0,0025	0,001		0,003	
CB/CSi									0,26
YB/YSi									0,3
Erreur									0,005

TABLE 3.22 – Traitement du 24.10.11.

Les résultats ont été envisagés selon différentes configurations et publiés dans le tableau 3.23 pour les différents éléments :

- le logiciel “Maestro” et erreurs relatives ;
- le logiciel “Maestro” et erreurs relatives b ;
- le logiciel “Maestro” et erreurs absolues ;
- le logiciel “Plot n ROI” et erreurs absolues.

Le logiciel “Maestro” a été utilisé, en gardant les mêmes régions d’intérêts pour les pics, en collaboration avec le Dr. Christian Neelmeijer (HZDR) et Fabienne Eder (TU Wien) afin de comparer les résultats obtenus par plusieurs personnes pour la même méthode de calcul. Les résultats “Maestro - Erreur relative” et “Maestro - Erreur relative b” ne diffèrent que par le scientifique qui les a déduits.

Pour le silicium, les variations des résultats obtenus pour les différentes méthodes sont très faibles, de 0,1 à 0,53%. La statistique des pics dans le spectre  $\gamma$  est en effet grande par rapport aux erreurs de calculs. Pour le sodium, les deux premières méthodes utilisant les erreurs relatives sont en bon accord (0,3%). Il en va de même pour les deux dernières méthodes utilisant les erreurs absolues (0,3%). Par contre, il existe une variation importante de 2,5% dépendante du choix du type d’erreurs.

La statistique allant en décroissant pour les autres éléments, les erreurs entre les différentes méthodes augmentent. L’aluminium garde un bon accord entre les deux premières méthodes (0,3%) mais les deux dernières méthodes ne sont ni en parfait accord entre elles (1,5%) ni avec les deux premières méthodes (2,2%). Le magnésium est un cas particulier puisqu’une correction doit être effectuée. Il existe déjà une variation de 2% sur le calcul du facteur de correction, ce qui explique en partie la variation de 2,5% entre les deux premières méthodes. Les deux dernières méthodes ne sont ni en bon accord entre elles (12%) ni avec les deux premières méthodes (7%). Seul un échantillon de référence contient suffisamment de bore que pour être quantifié, et de plus la statistique associée est très faible. Les variations sont dès lors les plus grandes entre les méthodes. Les deux premières méthodes varient de 7% tandis que la dernière méthode varie de plus de 20% par rapport à la méthode utilisant Maestro pour le même type d’erreur.

Il conviendra donc de conclure, qu’une attention particulière doit être portée lors de la réalisation de ces calculs. Une méthode se doit d’être bien définie en terme de régions d’intérêts des pics, de type d’erreurs considéré,

de calcul du facteur de correction et même de logiciel de traitement (Calcul d'aires et ajustement) pour être appliquée de manière similaire lors des analyses d'échantillons de compostion et de concentrations inconnues.

Elément	Logiciel	Erreur	Valeur du fit	Comparaison
Si	Maestro	Erreur relative	$0,213 \pm 0,001$	
	Maestro	Erreur relative b	$0,212 \pm 0,001$	0,5%
	Maestro	Erreur absolue	$0,213 \pm 0,003$	0,1%
	Plot n ROI	Erreur absolue	$0,212 \pm 0,003$	0,4%
Na	Maestro	Erreur relative	$5,68 \pm 0,08$	
	Maestro	Erreur relative b	$5,7 \pm 0,1$	0,3%
	Maestro	Erreur absolue	$5,84 \pm 0,02$	2,5%
	Plot n ROI	Erreur absolue	$5,83 \pm 0,02$	0,3%
Al	Maestro	Erreur relative	$1,81 \pm 0,03$	
	Maestro	Erreur relative b	$1,81 \pm 0,02$	0,3%
	Maestro	Erreur absolue	$1,77 \pm 0,02$	2%
	Plot n ROI	Erreur absolue	$1,79 \pm 0,025$	1,5%
Mg	Maestro	Erreur relative	$0,61 \pm 0,03$	(0,188)
	Maestro	Erreur relative b	$0,6 \pm 0,04$	2,5% (0,184)
	Maestro	Erreur absolue	$0,64 \pm 0,3$	7% (0,184)
	Plot n ROI	Erreur absolue	$0,57 \pm 0,015$	12% (0,1869)
B	Maestro	Erreur relative	1,23	
	Maestro	Erreur relative b	1,14	7%
	Maestro	Erreur absolue	$1,14 \pm 0,02$	
	Plot n ROI	Erreur absolue	$1,43 \pm 0,03$	20%

TABLE 3.23 – Corrélations linéaires avec le nouvel accélérateur 6 MV.

Les figures 3.10 à 3.14 reprennent les graphiques correspondants aux ajustements des corrélations linéaires calculés avec la dernière méthode en 2011.

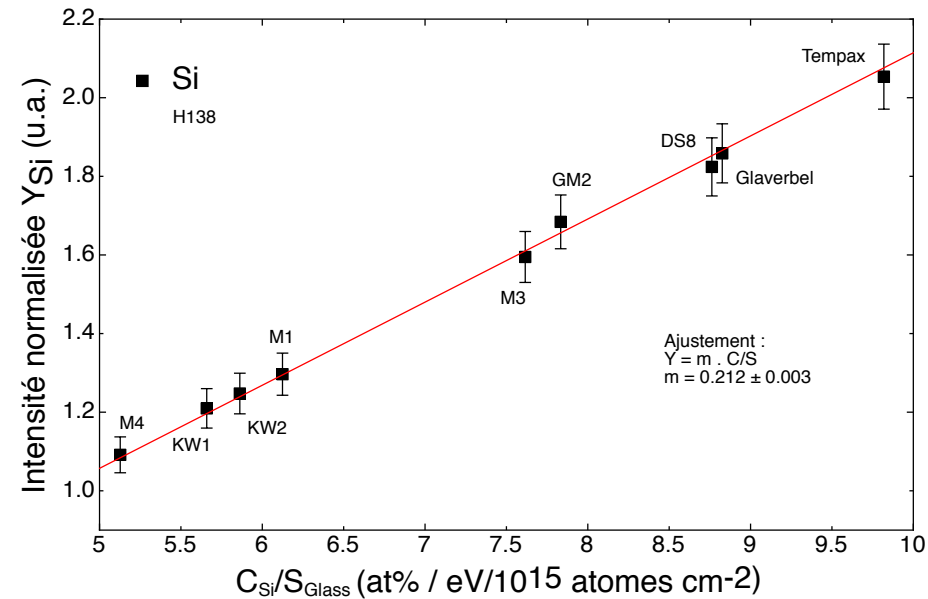


FIGURE 3.10 – Corrélation linéaire du silicium en 2011.

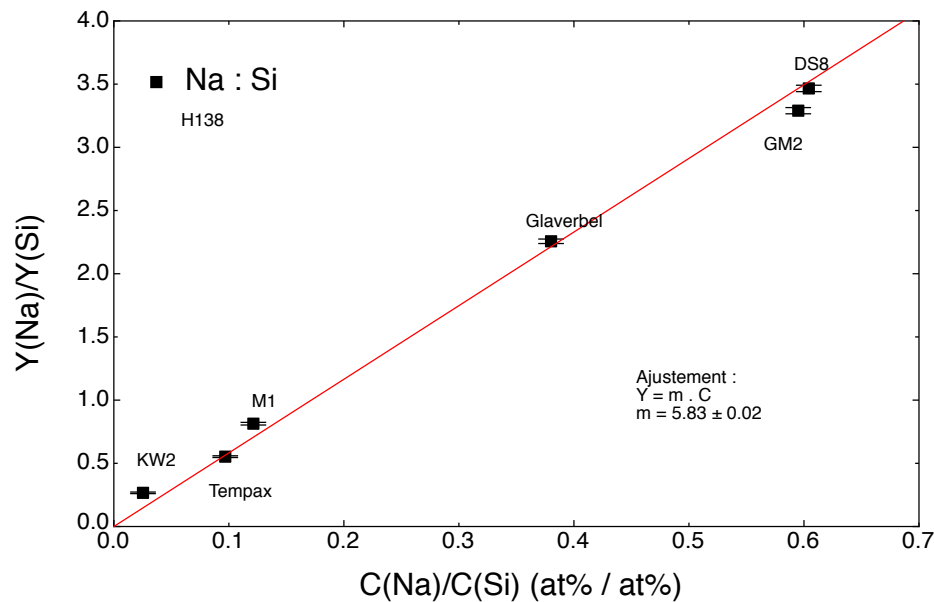


FIGURE 3.11 – Corrélation linéaire du sodium en 2011.

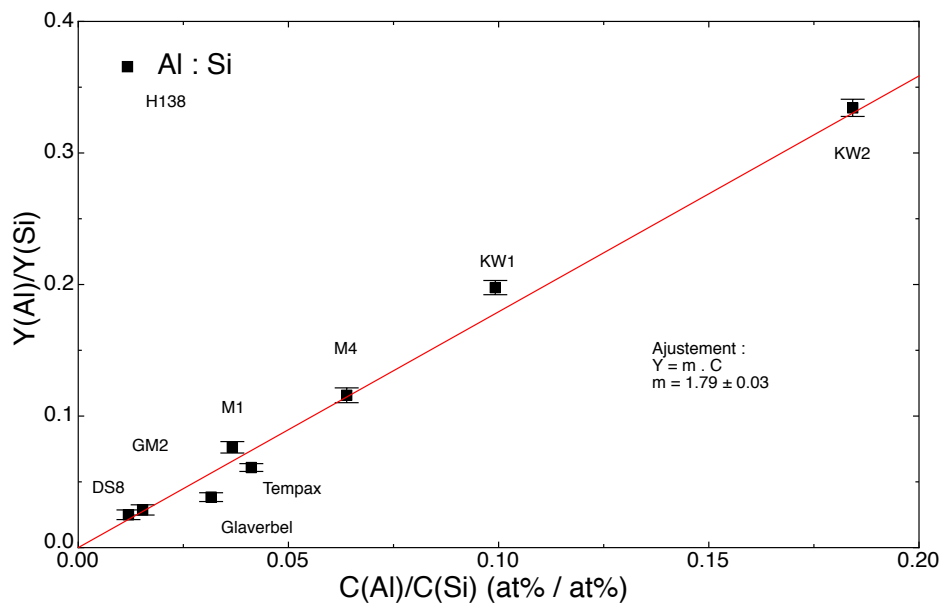


FIGURE 3.12 – Corrélation linéaire de l'aluminium en 2011.

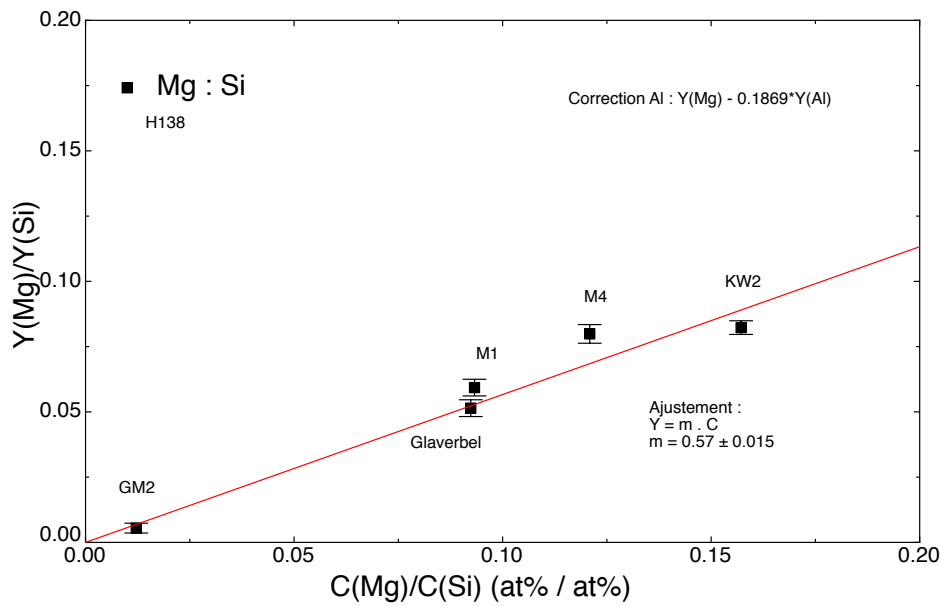


FIGURE 3.13 – Corrélation linéaire du magnésium en 2011.

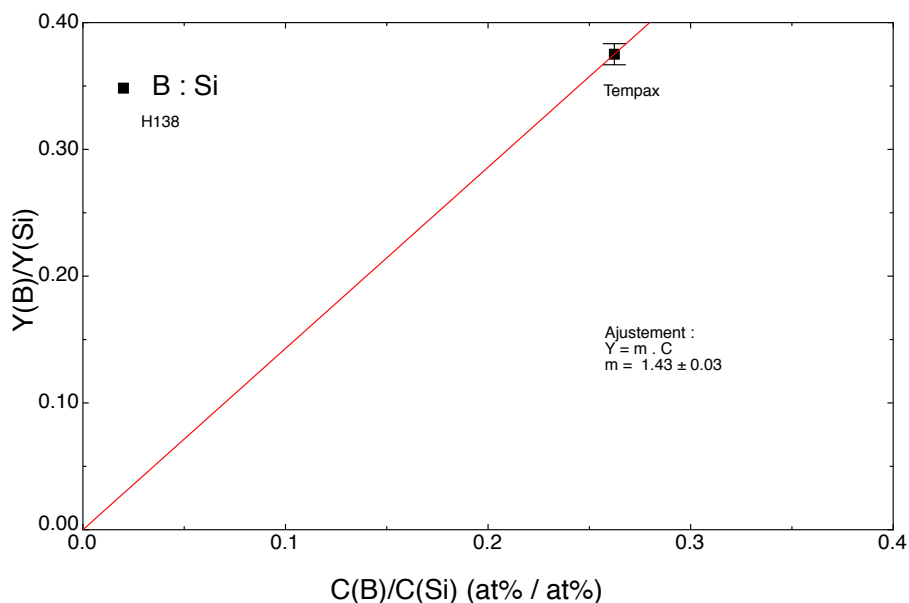


FIGURE 3.14 – Corrélation linéaire du bore en 2011.

### 3.3.4 Comparaison des calibrations de 2008 et 2011

Le tableau 3.24 reprend les corrélations linéaires de 2008 et de 2011 calculées par Maestro en utilisant les erreurs relatives pour les différents éléments. Les variations augmentent de 1,3% à 1,8% pour les premiers éléments où la statistique est importante. Les éléments de moindre statistique que sont le magnésium et le bore varient de 3,1 à 5,2%.

En conclusion, les corrélations linéaires du nouvel accélérateur permettent dorénavant d'utiliser la méthode PIGE pour la détection des éléments légers d'une matrice vitreuse.

Elément	Tandem	Erreur	Valeur du fit	Comparaison
Si	5 MV	Erreur relative	$0,216 \pm 0,002$	
	6 MV	Erreur relative	$0,213 \pm 0,001$	1,3%
Na	5 MV	Erreur relative	$5,8 \pm 0,1$	
	6 MV	Erreur relative	$5,69 \pm 0,08$	1,8%
Al	5 MV	Erreur relative	$1,78 \pm 0,05$	
	6 MV	Erreur relative	$1,81 \pm 0,03$	1,75%
Mg	5 MV	Erreur relative	$0,59 \pm 0,035$	(0,186)
	6 MV	Erreur relative	$0,61 \pm 0,03$	3% (0,188)
B	5 MV	Erreur relative	1,164	
	6 MV	Erreur relative	1,227	5%

TABLE 3.24 – Comparaison des calibrations de 2008 et 2011.





## Chapitre 4

# Calibration de la zone de travail de la ligne - Kanal 5 pour la méthode RBS avec le nouvel accélérateur tandem de 6 MV

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Calibration effectuée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV . . . . .</b>	<b>184</b>
4.1.1	Calibration RBS extrait . . . . .	184
<b>4.2</b>	<b>Expériences avec l'accélérateur de 6 MV . . . .</b>	<b>188</b>
4.2.1	Vérification de l'énergie incidente de 4 MeV proton	188
4.2.2	Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 04.11.11 . .	190
4.2.3	Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 14.11.11 . .	201

---

Ce chapitre a pour objectif de présenter les expériences réalisées par le dispositif d'analyse RBS en faisceau extrait, afin de pouvoir non seulement réaliser des analyses qualitatives mais également quantitatives sur des objets en couches du patrimoine culturel ou industriel. Pour ce faire, une comparaison entre les différentes méthodes par faisceaux a été réalisée. Les méthodes PIXE en mode "couche" ou "intermédiaire", RBS extrait et He-RBS ont fait l'objet d'une étude comparative sur diverses cibles minces déposées sur des

substrats épais de carbone ou de silicium.

## 4.1 Calibration effectuée avec l'ancien accélérateur tandem de 5 MV

Dans un premier temps, une première approche quantitative a été réalisée avec des résultats d'expériences réalisées en 2005 pour définir la stratégie et le protocole à mettre en place avec le nouvel accélérateur.

### 4.1.1 Calibration RBS extrait

Les expériences réalisées précédemment sur l'accélérateur ont permis de déduire la calibration du spectre entre l'énergie des particules rétrodiffusées et le numéro du canal de la chaîne électronique d'acquisition.

$$Energie(MeV) = 0,00865(\pm 0,00007).Canal + 0,14(\pm 0,03) \quad (4.1)$$

Le graphique de la figure 4.1 reprend l'ajustement linéaire de la calibration réalisé avec les résultats des expériences du RBS extrait repris au tableau 4.1.

Afin de vérifier cette calibration, les échantillons de référence épais Fe, Ag et Al ont été analysés. Le tableau 4.2 précise également que les analyses PIXE ont également été réalisées afin de vérifier les paramètres de calibration de la PIXE (cfr. le chapitre précédent).

En complément de ces premiers échantillons, des cibles minces déposées sur un substrat de carbone, reprise au tableau 4.3 ont également été analysés pour comparer les résultats d'une étude quantitative PIXE, RBS extrait et He-RBS.

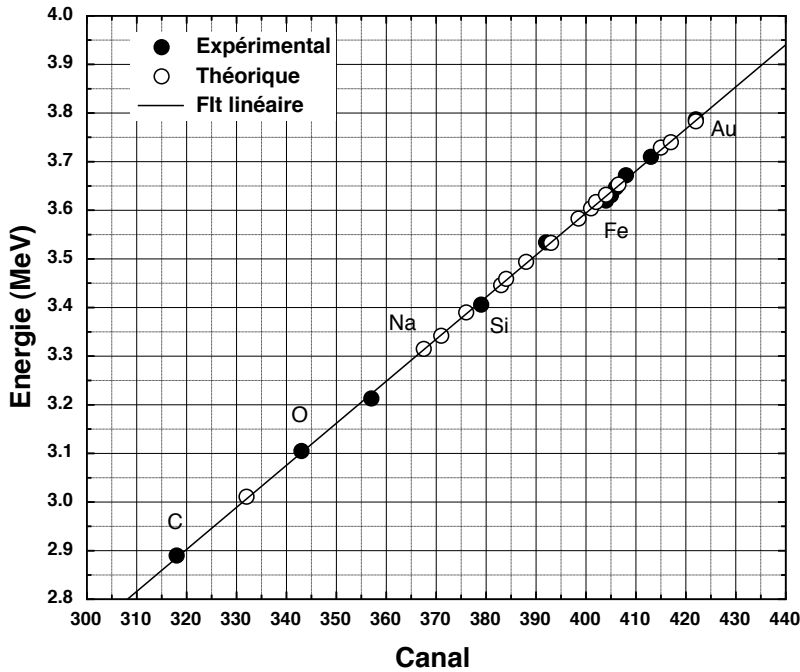


FIGURE 4.1 – Fit linéaire de la calibration en énergie du RBS extrait.

### Résultats RBS extrait :

Le logiciel SIMNRA permet de calculer les épaisseurs des cibles minces avec des statistiques assez faibles pourtant obtenues avec des temps d'analyses d'une vingtaine de minutes, comme le montre le tableau 4.4.

A partir de ces paramètres de dépouillement, il est possible de déduire un angle solide de  $0,21\text{E-}03$  sr, nettement plus petit que les 3,1 msr de GONNY.

### Comparaison avec l'He-RBS et la PIXE :

Le tableau 4.5 permet de comparer les résultats des différentes méthodes quantitativement. La méthode He-RBS étant la plus adaptée à ces expériences, les résultats issus de son application sont supposés être les plus en adéquation avec la réalité.

Pour la cible de fer, le RBS extrait sur-estime la valeur de 17% tandis que la PIXE la sous-estime de 15 %. Le même comportement s'observe pour les autres cibles ; une surestimation de 16 et de 0,9 % et une sous-estimation de

Elément	Z	M	Facteur cinématique (135°)	Energie (MeV)	Canal (expérimental)	Canal (théorique)
C	6	12,011	0,7507	2,89	318	318
N	7	14,007	0,78215	3,011		332
O	8	15,999	0,80655	3,105	343	343
F	9	18,998	0,83445	3,213	357	356
Na	11	22,99	0,86115	3,315		367,5
Mg	12	24,305	0,86805	3,342		371
Al	13	26,982	0,8804	3,39		376
Si	14	28,086	0,8848	3,406	379	378
P	15	30,974	0,895	3,446		383
S	16	32,064	0,89835	3,459		384
Cl	17	35,453	0,9076	3,494		388
Ar	18	39,948	0,91755	3,533		393
Ca	20	40,078	0,91785	3,534	392	393
Ti	22	47,878	0,93075	3,583		398,5
Cr	24	51,996	0,93605	3,604		401
Mn	25	54,938	0,9394	3,617		402
Fe	26	55,847	0,9403	3,62	404	403
Co	27	58,933	0,9434	3,632		404
Ni	28	58,688	0,9431	3,631	405	404
Cu	29	63,546	0,94735	3,647	406	406
Zn	30	65,396	0,9488	3,653		406,5
Ge	31	72,61	0,95375	3,672	408	409
Nb	41	92,906	0,9637	3,71	413	413
Ag	47	107,868	0,96865	3,729		415
Sn	50	118,613	0,97145	3,74		417
Au	79	196,967	0,9827	3,783		422
Pb	82	207,217	0,98355	3,787	422	422

TABLE 4.1 – Données du fit de la calibration en énergie du RBS extrait.

		Fe (5MV)	Ag (5MV)	Al (5MV)
	Courant	50 pA	50 pA	200 pA
PIXE 1	Taux de comptage(cps/s)	900	400	500
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,691	9,87	9,76
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	/	900	0
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	/	9,435	/
RBS	Canal	403	415	376
RBS-Dose	Preset	10000	10000	10000

TABLE 4.2 – Expériences 15 septembre 2005 .

		Ni/C (5MV)	Mo/C (5MV)	Fe/C (5MV)
	Courant	350 pA	350 pA	200 pA
PIXE 1	Taux de comptage(cps/s)			200
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,96	9,93	9,97
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	400	100	
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,76	9,95	9,925
RBS	Live time (s)	1198,96	1229,74	1642,72
	Real time (s)	1250,5	1281,1	1694,4
RBS-Dose	Preset	50000	50000	50000

TABLE 4.3 – Cible mince élémentaire sur substrat de carbone du 25 juillet 2005.

Echantillons	Dose	Particules x sr.	Epaisseur calculée	Erreur (%)
Fe/C	50000	6,27E+10	60,4 $\mu g/cm^2$	2,5
Ni/C	50000	6,27E+10	107 $\mu g/cm^2$	1,5
Mo/C	50000	6,27E+10	176,5 $\mu g/cm^2$	1

TABLE 4.4 – Epaisseurs calculées en RBS extrait.

3,5 et de 62 % pour le nickel et le molybdène.

La cible de molybdène semble à l’oeil nu fortement abîmée, cela pourrait expliquer le mauvais résultat de la PIXE qui est invisible aux éléments légers. Pour les deux autres éléments, les méthodes extraites bien qu’elles aient parfois de grandes variations semblent être une possibilité envisageable pour l’analyse d’objets en couches du patrimoine culturel.

Epaisseurs	Gonny	RBS extrait	PIXE 1
Fe/C	50,2 $\mu g/cm^2$	60,35 $\mu g/cm^2$	43,7 $\mu g/cm^2$
Ni/C	89,6 $\mu g/cm^2$	107 $\mu g/cm^2$	86,7 $\mu g/cm^2$
Mo/C	175 $\mu g/cm^2$	176 $\mu g/cm^2$	108 $\mu g/cm^2$

TABLE 4.5 – Récapitulatif des épaisseurs calculées.

## 4.2 Expériences avec l'accélérateur de 6 MV

A la suite de l'installation du nouvel accélérateur tandem de 6 MV, plusieurs expériences visant à rendre quantitative la méthode RBS extraite ont eu lieu.

### 4.2.1 Vérification de l'énergie incidente de 4 MeV proton

Dans un premier temps, suite aux déplacements des aimants d'analyses, une vérification de l'énergie incidente des protons a été envisagée bien que l'énergie ait été calibrée à la sortie de l'accélérateur et après les aimants d'analyses. En réalité, cette vérification a eu lieu avant la calibration en énergie du faisceau après les aimants d'analyse.

Pour ce faire, trois échantillons épais de référence ont été analysés sous faisceau afin de comparer les spectres aux spectres obtenus avec l'ancien accélérateur de 5 MV et ainsi de vérifier l'énergie incidente de 4 MeV. Pour la méthode PIXE, les aires des pics et la concentration sont les éléments de comparaison, en tenant compte d'une position différente pour le détecteur PIXE 2. Pour la méthode RBS, le premier critère est le numéro de canal correspondant à la mi-hauteur du palier.

Les expériences du 02.09.11 (reprises au tableau 4.6) ont été comparées aux expériences du 15.09.05.

		Fe (6MV)	Ag (6MV)	Al (6MV)
	Courant	50 pA	50 pA	200 pA
PIXE 1	Taux de comptage(cps/s)	900	400	500
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,71	9,86	9,79
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	/	900	0
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	/	9,49	/
PIGE	Taux de comptage (cps/s)	200	200	2000
	Q ( $\mu C$ ) ( $\pm 1\%$ )	9,87	9,89	9,22
RBS	Canal	403	415	376
RBS-Dose	Preset	10000	10000	10000

TABLE 4.6 – Expériences du 2 septembre 2011.

**Le cas de la méthode PIXE :**

Le dépouillement des expériences a été réalisé avec les valeurs des paramètres calculés au précédent chapitre :

- PIXE 1.

$H$  (6,12E-5), filtre de Mylar (4,4  $\mu m$ ), énergie des protons (3850 keV)

- La concentration de Fe calculée est de 105,4% au lieu de 99,8% antérieurement.
- La concentration d'Ag calculée est de 113% au lieu de 101% antérieurement.
- La concentration d'Al calculée est de 98,6% au lieu de 100% antérieurement.

- PIXE 2.

$H$  (3,59E-4), filtre d'acrylique (1055  $\mu m$ ), énergie des protons (3850 keV)

- La concentration d'Ag calculée est de 86,1% au lieu de 99,9% antérieurement.

Il existe des différences notables entre les variations des différentes concentrations. Est-ce un problème dû à une variation de l'énergie incidente des protons ?

Pour s'en assurer, un nouveau dépouillement a été réalisé avec de nouvelles valeurs de paramètres. Les résultats ont été dépouillés à une énergie de 3900 keV, supérieure de 50 keV à l'ancienne énergie. Une énergie inférieure donne de moins bons résultats sur les concentrations initiales du Fe et de l'Ag et n'a donc pas été envisagée plus longuement.

Les paramètres initiaux sont réutilisés :  $H$  (6,12E-5), filtre de Mylar (4,4  $\mu m$ ) pour définir un nouveau facteur  $H$ .

La concentration de Fe calculée est de 103% au lieu de 105,4% et la concentration d'Ag calculée est de 107,3% au lieu de 113,1% antérieurement.

Le facteur de correction est alors calculé  $\frac{[Fe]+[Ag]}{2}=1,05$  et le facteur  $H$  devient égal à  $1,05 \cdot 6,12E-5 = 6,43E-5$ .

La concentration de Fe calculée est de 98,2% au lieu de 103% et la concentration d'Ag calculée est de 102,2% au lieu de 107,3% précédemment. La concentration d'Al alors calculée est de 94,1% au lieu de 98,6% pour un filtre de Mylar de 4,4  $\mu m$ . Une épaisseur de 4,8  $\mu m$  permet tout de même d'obtenir une concentration de 99,3%.

Les nouveaux paramètres sont plus proches de ceux obtenus avec l'ancien accélérateur avec l'augmentation de l'énergie incidente des protons. L'utilisation complémentaire de la méthode RBS extraite va permettre de s'affranchir de ces questions.

### **RBS extrait :**

Le tableau 4.7 met en évidence que le numéro de canal de la moitié du front montant du spectre RBS est resté le même pour les deux accélérateurs et que les aires sont restées plus ou moins identiques (variation de l'ordre de 2 à 3%).

	Aire totale 6MV	Aire totale 5MV	Rapport	Canal
Fe	239900	244500	0,981	403
Ag	554500	547500	1,013	415
Al	175000	179500	0,973	376

TABLE 4.7 – Comparaison du RBS extrait.

En conclusion, si la PIXE permet de laisser croire à une variation de l'énergie incidente de l'ordre d'une cinquantaine de keV, la méthode RBS réfute cette hypothèse. En effet, un canal correspond à 8,65 keV selon la calibration en énergie. Une variation de 50 keV aura pour conséquence sur l'énergie détectée dans le cas de l'Al (l'élément le plus léger analysé), une variation de 44 keV. Ce qui correspond à 5 canaux. Or, les résultats indiquent que le numéro de canal du milieu du front montant est le même pour les deux accélérateurs à cette énergie de 4000 keV.

### **4.2.2 Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 04.11.11**

Dans la continuité des expériences réalisées en 2005, de nouvelles cibles minces ont été analysées en 2011 avec le nouvel accélérateur tandem de 6



MV. A partir des conclusions tirées des expériences précédentes, des échantillons minces déposés sur un substrat de silicium ont été préférés à ceux déposés sur un substrat de carbone. En effet, les résultats obtenus avec l'He-RBS ont montré que les sections efficaces Non-Rutherford sur le carbone étaient méconnues. Une plus grande crédibilité est dès lors donnée aux résultats des échantillons sur substrat de silicium. Le choix des épaisseurs est assez fin que pour s'assurer de séparer en énergie les pics issus de la couche mince et du substrat de silicium, aussi bien en protons de 4 MeV qu'en particules  $\alpha$ . De plus, la présence de rayons X émis par le silicium dans le spectre permet de comparer les modes "Layer" pour la PIXE 1 et "Intermediate" pour la PIXE 2.

Le tableau 4.8 reprend la liste des échantillons analysés pour comparer les quatre méthodes IBA. Une première cible extrêmement fine de 20 nm d'or a été sondée afin de diminuer l'influence de l'épaisseur de la cible mince sur la largeur du palier RBS et ainsi définir au mieux la résolution expérimentale du détecteur à utiliser. Les cibles suivantes ont été choisies avec une épaisseur maximale, 100 nm, pour augmenter la statistique et limiter le temps d'analyse en conséquence. Pour finir, la cible mince de fer sur un substrat de carbone a également fait l'objet d'une analyse pour vérifier et justifier le choix préalable de cibles minces sur un substrat de silicium. Il faut aussi ajouter les cibles épaisses de référence, pour la même période de faisceau, introduites précédemment.

Echantillon		Au/Si 20 nm	Ta/Si 100 nm	Ni/Si 100 nm	V/Si 100 nm
	Courant (pA)	150	150	150	150
PIXE 1	Taux de comptage (cps/s)	1000	800	800	800
	Real time (s)	824,5	1038,76	1164,66	1567,96
	Live time (s)	805,98	1007,46	1137,3	1532,48
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	9,77	19,40	19,53	19,55
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	70	200	200	200
No Ta	Real time (s)	825,08	1039,8	1165,76	1569,74
	Live time (s)	823	1026,96	1151,68	1565,96
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	9,97	19,75	19,76	19,95
RBS extrait	Real time (s)	825,52	1039,98	1165,86	1568,96
	Live time (s)	821,7	1032,1	1158,26	1561,32
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	9,95	19,856	19,87	19,90
GONNY	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ )	10	10	10	10
Echantillon		Co/Si 100 nm	Fe/Si 100 nm	Cr/Si 100 nm	Fe/C 50 nm
	Courant (pA)	200	150	150	300
PIXE 1	Taux de comptage (cps/s)	800	800	800	
	Real time (s)	1126,1	839,16	1364,74	285,1
	Live time (s)	1094,32	809,44	1333,24	284,1
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	19,44	19,29	19,54	9,96
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	60	200	100	200
No Ta	Real time (s)	1127,04	839,82	1366,32	284,66
	Live time (s)	1117,44	828,58	1359,22	281,86
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	19,83	19,73	19,90	9,90
RBS extrait	Real time (s)	1127,04	840,36	1365,92	286,04
	Live time (s)	1119,42	832,78	1358,26	275,92
	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	19,86	19,82	19,89	9,65
GONNY	Q ( $\mu\text{C}$ ) ( $\pm 1\%$ )	10	10	10	10

TABLE 4.8 – Echantillons du 04.11.11.

## PIXE 1

Les paramètres déduits au chapitre précédent ont été vérifiés et appliqués pour la suite des dépouillements liés à la méthode PIXE 1. Le facteur de correction H équivaut ainsi à  $6,5E-5$  et l'épaisseur du filtre de Mylar à  $4,4 \mu\text{m}$ .

La philosophie du mode "Layer" de GupixWin a été envisagée pour les cibles minces sur le substrat de silicium suite à la présence des rayons X émis par le substrat dans le spectre PIXE. Le courant d'analyse a été ajusté de manière à ne pas dépasser un taux de comptage de 1000 coups par seconde, rapidement atteint par l'intensité importante des rayons X du silicium. L'intensité du courant a donc été fortement limitée, ce qui a eu pour effet de provoquer une augmentation notable du temps d'analyse pour avoir une statistique suffisante.

La philosophie "Intermediate" a, elle, été envisagée pour les cibles minces sur le substrat de carbone, la méthode PIXE étant invisible aux éléments organiques de par les faibles énergies de leurs rayons X.

## PIXE 2

La philosophie "Intermediate" a, dans le cas de la PIXE 2, été envisagée pour toutes les cibles minces, la méthode étant invisible aux éléments organiques de par les faibles énergies de leurs rayons X et aux éléments légers de par leur atténuation quasi totale dans le filtre d'acrylique ou l'enceinte d'air ambiant.

Les paramètres déduits au chapitre précédent ont, également, été vérifiés et appliqués pour la suite des dépouillements liés à la méthode PIXE 2. Le facteur de correction H équivaut ainsi à  $3,65E-4$  et l'épaisseur du filtre à  $1045 \mu\text{m}$ .

Le taux de comptage est largement inférieur à 1000 coups par seconde pour la gamme de courant correspondant à une bonne utilisation de l'électronique de PIXE 1. En effet, le détecteur ne collecte pas les rayons X émis par le substrat. De ce fait, aucun ajustement du courant n'a été effectué en fonction de la PIXE 2.

## RBS extrait

Afin de rendre la méthode RBS extraite quantitative, une stratégie d'analyse a dû être mise au point :

- Mettre à jour les sections efficaces Non-Rutherford à l'aide de la base de donnée en ligne de l'IAEA via le portail SigmaCalc de IBANDL [58].
- Utiliser les cibles épaisses de références d'Ag et de Mo pour définir la dose "théorique" de particules incidentes et en déduire l'angle solide de détection corrigé par le temps mort de l'électronique.
- Analyser et simuler le spectre de la cible mince d'or (20 nm) sur le substrat de silicium pour définir la résolution en énergie du détecteur.

Les paramètres ont alors été définis :

- angle de rétro-diffusion :  $135^\circ$  ;
- énergie incidente des protons : 3850 keV ;
- résolution en énergie du détecteur : 33 keV ;
- dispersion en énergie du faisceau incident : 1 keV ;
- angle solide de détection :  $1,165 \times 10^4$  particules.sr, c'est-à-dire 0,187 msr ;
- calibration :  $8,65 \text{ Canal} + 130 \text{ keV}$ .

A partir de ces nouveaux paramètres, une stratégie, semblable à celle employée pour les expériences de He-RBS, a été utilisée :

- Analyser les autres échantillons-cibles pour en déduire l'épaisseur des cibles minces.
- Vérifier si la dose expérimentale est en accord avec la dose "théorique" en comparant le spectre simulé et le spectre RBS extrait des substrats.
- Simuler le palier correspondant à la cible mince et en déduire son épaisseur à l'aide du logiciel SIMNRA ou SIMNRARES si plusieurs éléments sont présents dans la couche de surface (par exemple un métal oxydé).

## He-RBS

Les caractéristiques et les paramètres des analyses He-RBS réalisées dans GONNY ont déjà été présentés et discutés dans les précédents chapitres. Ils ne font donc pas l'objet d'une redite.

### Comparaison des quatre méthodes

Le tableau 4.9 reprend les résultats obtenus avec les quatre méthodes différentes.

Épaisseur (nm)	PIXE 1	Erreur (%)	PIXE 2	Erreur (%)	RBS extrait	Erreur (%)	GONNY	Erreur (%)
Au/Si	20,5	15	22	3	19	4	19,1	1,2
Ta/Si	174	4	192	1,5	186	2	184,5	1,1
Ni/Si	92	3	102	1,5	109	3	99	1,2
V/Si	89	3,5	109	2,	104	4	102,5	1,3
Co/Si	64	4	72	1,7	69	3,5	68,5	1,3
Fe/Si	98	2,5	110	1,5	112	3	107	1,2
Cr/Si	155	3	177	8	177	3	181	1,2
Fe/C	63	12	69	2	67	5	67	1,3

TABLE 4.9 – Récapitulatif des résultats des épaisseurs des cibles minces sur substrat épais.

Dans un premier temps, avant de comparer les résultats des épaisseurs, une attention particulière doit être portée aux erreurs liées aux différentes méthodes.

Pour la PIXE, les erreurs tiennent compte de la statistique et de l'ajustement. Par contre les erreurs calculées pour la méthode RBS tiennent uniquement compte de la statistique et sont donc largement sous-estimées dans le cas du RBS extrait qui jouit d'une mauvaise statistique. L'He-RBS, elle, jouissant d'une très bonne statistique a des erreurs relativement petites de l'ordre du pourcent.

Dans le cas de la méthode PIXE 2, si les résultats du chrome (pouvant être parasités par des rayons X de fer et de chrome émis par le nez d'extraction) sont négligés, possèdent de faibles erreurs de 1 à 2% pour les éléments analysés par leurs raies *K* et de 1 à 3,6% pour les les éléments analysés par leurs raies *L* (Au et Ta).

La méthode PIXE 1 possède des erreurs plus importantes, de 2 à 4% pour les éléments analysés par leurs raies *K* (sauf le fer) et de 4 à 15% pour les éléments analysés par leurs raies *L*. Cette augmentation de l'erreur pourrait s'expliquer en partie par le manque de précision des données fondamentales.

En effet, les bases de données des sections efficaces de production de rayons X sont en effet inférieures et de surcroît sujettes à plus d'erreurs pour les raies  $L$  que pour les raies  $K$ .

Ensuite, la méthode PIXE étant visible à la présence d'oxygène, les épaisseurs ont été corrigées par le rapport des densités du matériau élémentaire et des densités de la cible oxydée dont la composition a été calculée en He-RBS. D'autre part, de par la faible statistique et la moins bonne résolution en énergie des protons, la correction a également été appliquée par le RBS extrait puisque la concentration en oxygène est sujette à controverse.

Les résultats des épaisseurs ont été comparés, dans le tableau 4.10, à ceux obtenus par l'He-RBS (Gonny), la méthode ayant été choisie comme référence.

%	PIXE 1 / Gonny	PIXE 2 / Gonny	RBS extrait / Gonny
Au/Si	8,2	16	0
Ta/Si	-5,5	4,5	0,7
Ni/Si	-7	3	9,6
V/Si	-13	6	1,6
Co/Si	-7	5	1,5
Fe/Si	-8	2,5	4
Cr/Si	-14	-2	-2,3
Fe/C	-0,95	-1	-1

TABLE 4.10 – Comparaison en pourcent des épaisseurs des méthodes par rapport à l'He-RBS.

La comparaison des deux méthodes RBS montre un excellent accord pour la majorité des éléments, de 0 à 2%, sauf pour le nickel (9,6%) et le fer (4%). Le rapport de 0% indique simplement que l'épaisseur de la couche d'or a été fixée afin de déduire la résolution en énergie du détecteur.

Les méthodes PIXE sont plus éloignées des résultats de GONNY. La PIXE 2 a tendance à surévaluer les épaisseurs des cibles minces et particulièrement pour l'or, tandis que la PIXE 1 a tendance à les sous-estimer excepté pour l'or.

Le tableau 4.11 permet la comparaison des deux méthodes et de souligner à nouveau que les valeurs obtenues par la PIXE 1 sont inférieures de 7

à 23% à celles de la PIXE 2.

Epaisseur (nm)	PIXE 1	PIXE 2	Delta (%)
Au/Si	20,5	22	-7,5
Ta/Si	174	192	-10,5
Ni/Si	92	102	-11
V/Si	89	108	-23
Co/Si	64	72	-13
Fe/Si	98	110	-12
Cr/Si	155	177	-14
Fe/C	63	69	-10

TABLE 4.11 – Comparaison des épaisseurs en pourcent de PIXE 1 et PIXE 2.

Les figures 4.2 et 4.3 reprennent les graphiques des épaisseurs calculées avec les quatre méthodes et les comparaisons auxquelles les barres d'erreurs ont été intégrées. Celles-ci permettent de resserrer les résultats obtenus par les méthodes RBS et la PIXE 2 excepté pour l'or. Par contre, sauf pour quelques éléments, la PIXE 1, sous-estime toujours les épaisseurs des cibles minces malgré l'importance des barres d'erreurs (excepté pour l'or). Ce comportement ne peut s'expliquer par la faible statistique, limitée par le temps d'analyse et la faible intensité du courant limitée par le taux de comptage des rayons X du substrat de silicium. En effet, le comportement serait alors plus enclin à surestimer ou sous-estimer les épaisseurs aléatoirement.

Il est judicieux de noter également que le substrat ne semble pas avoir d'influence sur ce comportement. En effet, les résultats obtenus sur les échantillons de fer sur un substrat de silicium ou de carbone tendent au même comportement.



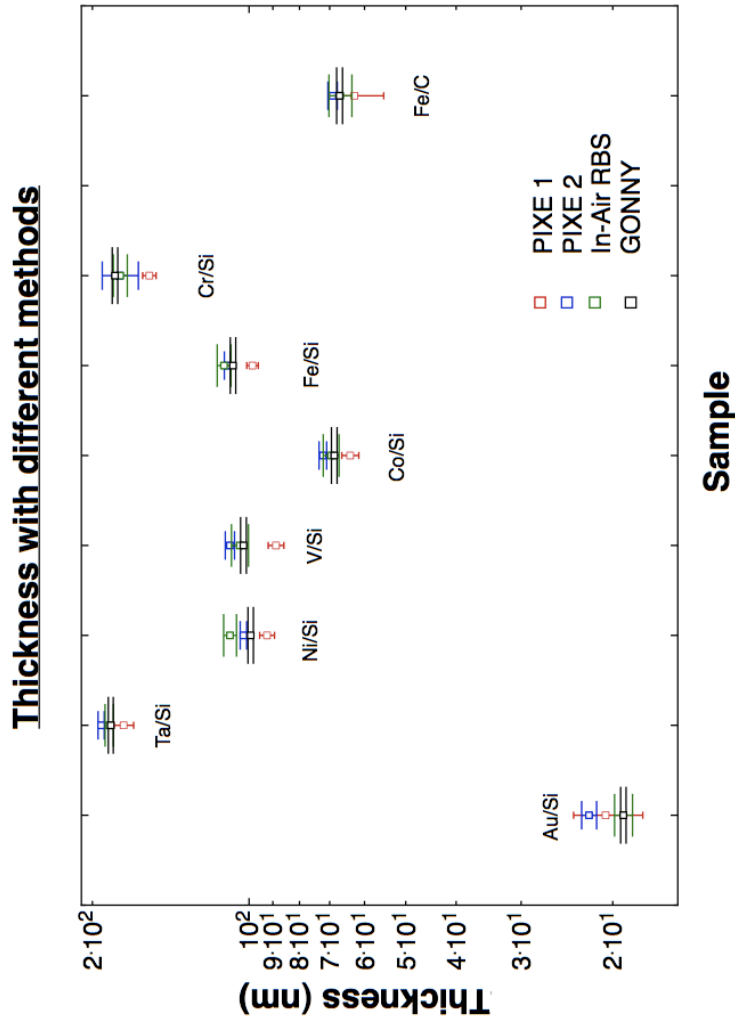


FIGURE 4.2 – Epaisseurs calculées par les quatre méthodes IBA.

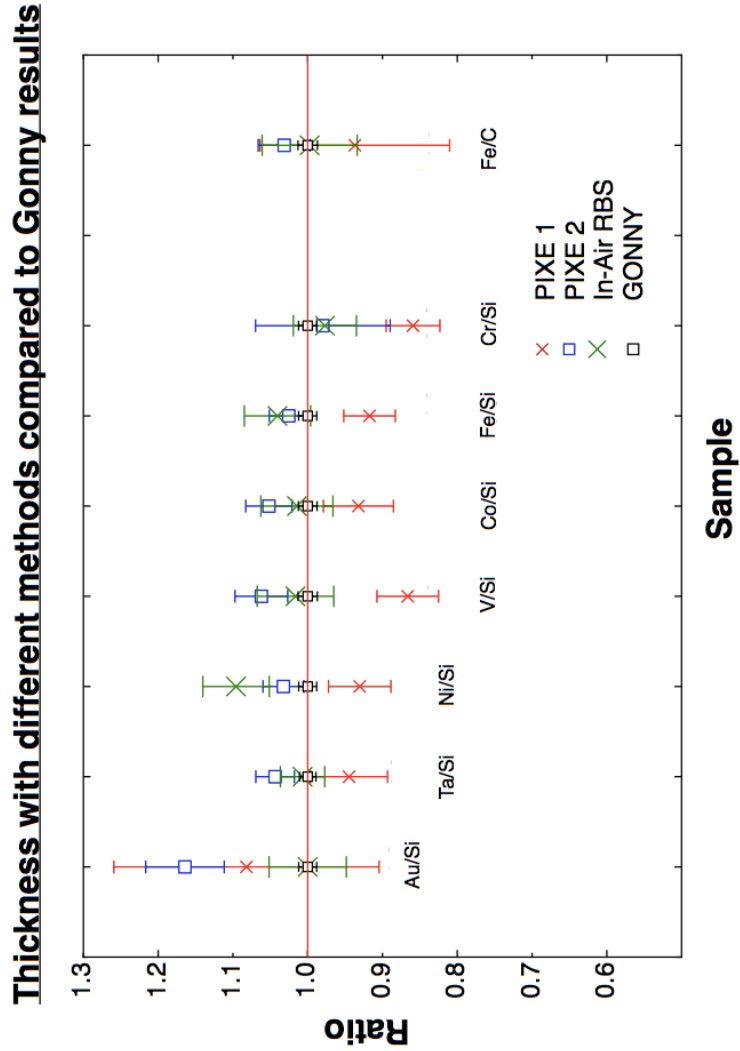


FIGURE 4.3 – Comparaison des épaisseurs des méthodes par rapport à l’He-RBS.

### 4.2.3 Comparaison des méthodes IBA pour l'analyse de cibles minces sur un substrat épais : 14.11.11

Les échantillons dont les résultats étaient les plus éloignés de l'expérience précédente ont été ré-analysés le 14.11.11 avec un temps d'analyse plus long, de cinq fois pour l'Au et de deux fois pour le V et le Ni.

Les tableaux 4.12 à 4.14 reprennent l'ensemble des résultats obtenus par la même stratégie que pour les expériences du 04.11.11. Un comportement totalement similaire aux résultats précédents dément définitivement une influence de la statistique et de la dose sur la précision des mesures des épaisseurs des cibles minces.

La prudence reste donc de rigueur pour l'analyse quantitative des différentes couche d'objets du patrimoine culturel. Pour rappel, si la méthode He-RBS obtient, de toute évidence, les meilleurs résultats, elle n'est pas applicable dans le contexte particulier des oeuvres d'art qui ne peuvent pas être soumise aux conditions du vide.

Il apparaît scientifiquement préférable d'utiliser des faisceaux de particules  $\alpha$  à l'air libre ce qui est envisagé par le laboratoire de l'IPNAS via le développement de la nouvelle ligne de transport analysée installée à la sortie du cyclotron de Liège.

Echantillon		Au/Si 20 nm	V/Si 100 nm	Ni/Si 100 nm
	Courant (pA)	150	150	200
PIXE 1	Taux de comptage (cps/s)	1000	800	1000
	Real time (s)	3507,16	992	878,46
	Live time (s)	3397,22	957,72	851,18
	Q ( $\mu$ C) ( $\pm 0,4\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	58,12	19,30	19,38
PIXE 2	Taux de comptage (cps/s)	50	50	300
No Ta	Real time (s)	3513,12	992,76	879,08
	Live time (s)	3500,68	988,98	864,86
	Q ( $\mu$ C) ( $\pm 0,4\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	59,79	19,92	18,68
RBS extrait	Real time (s)	3508,76	992,9	879,42
	Live time (s)	3485,66	985,3	871,88
	Q ( $\mu$ C) ( $\pm 0,4\%$ ou $\pm 0,7\%$ )	59,60	19,85	19,83
GONNY	Q ( $\mu$ C) ( $\pm 1\%$ )	10	10	10

TABLE 4.12 – Echantillons du 14.11.11.

Comparaison des quatre méthodes

Epaisseur (nm)	PIXE 1	Erreur (%)	PIXE 2	Erreur (%)	RBS extrait	Erreur (%)	GONNY	Erreur (%)
Au/Si	22	6	23	2	19	1	19	1
V/Si	93	2,5	112	6	94	3	102,5	1
Ni/Si	92	3	106	1	98	2	99	1

TABLE 4.13 – Résultats des épaisseurs des quatre méthodes.

Rapport	PIXE 1 / Gonny	PIXE 2 / Gonny	In-Air RBS / Gonny	Gonny / Gonny
Au/Si	14,7	18,6	0	1
V/Si	-9,3	9	-8,8	1
Ni/Si	-6,9	6,7	-0,75	1

TABLE 4.14 – Comparaison des résultats des épaisseurs des quatre méthodes.

# Conclusion

Les stratégies de calibration des faisceaux extraits mises en place pour les deux détecteurs de rayons X lors de cette collaboration ont permis :

- dans le cas de la méthode PIXE : une calibration des paramètres d'acquisition à utiliser dans le logiciel de dépouillement GupixWin ;
- dans le cas de la méthode PIGE : une calibration des ajustements linéaires des concentrations des éléments légers par rapport à la concentration du silicium.

Ces deux nouvelles calibrations ont été comparées avec celles utilisées avec l'ancien accélérateur. Les comparaisons ne traduisent que de très légères variations, ce qui rend possible l'utilisation des nouvelles calibrations avec l'accélérateur récemment acquis.

- dans le cas de la méthode RBS : une calibration des paramètres d'acquisition à utiliser dans le logiciel de dépouillement SIMNRA. Ceci a permis de rendre les résultats obtenus par la méthode RBS quantitatifs.

Ces calibrations devraient aider dorénavant (dans un futur proche) à calibrer les détecteurs associés à la zone de travail de la voie 8 de l'IPNAS pour une géométrie fixée. Elles devraient permettre des gains de temps, de précision (bouclage à 100% des concentrations non forcé) et la comparaison des résultats obtenus lors de différentes campagnes. En effet, l'emploi actuel de différents couples énergie/particule et de géométries variables ne permet pas une calibration précise des paramètres d'acquisition, et oblige à définir les paramètres au quotidien. De plus, ils devraient faciliter l'utilisation de faisceaux "exotiques" pour certaines problématiques particulières.



## Quatrième partie

# Etudes et comparaisons des différents couples énergie/particule pour la méthode PIXE





# Introduction

Afin de pouvoir mettre en évidence les avantages et les inconvénients de l'utilisation des faisceaux de haute énergie pour les analyses PIXE, une collaboration a été initiée entre l'IPNAS et le C2RMF (Centre de Recherche et de Restauration des Musées de France) au printemps 2008.

Cette étude a été réalisée, en partie, à Paris avec la participation de spécialistes IBA provenant de différents centres européens : J. Salomon (C2RMF), A. Climent-Font (CMAM), H.-E. Mahnke (FU et HZB). Les résultats de l'utilisation de faisceaux de 1,5 à 6 MeV produits par un accélérateur électrostatique de moindre énergie sont comparés pour aider à une meilleure compréhension des phénomènes nucléaires impliqués dans les interactions entre les particules des différents faisceaux et les échantillons minces ou épais.

L'autre partie de cette étude a été réalisée au laboratoire de Liège. Le cyclotron permet de compenser le faible pouvoir de pénétration des particules en augmentant l'énergie jusqu'à une vingtaine de MeV. Les résultats de l'utilisation des faisceaux de protons de 3 MeV et de particules  $\alpha$  de 6 à 12 MeV sont comparés pour montrer la complémentarité des différents types de faisceaux pour l'étude des objets du patrimoine culturel et donc de tout autre échantillon complexe.

Enfin, la conclusion présente la comparaison des résultats des différents couples énergie/particule obtenus avec les deux accélérateurs.



# Chapitre 1

## L'Accélérateur Grand Louvre pour des Analyses Elémentaires

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>L'accélérateur AGLAE . . . . .</b>	<b>209</b>
1.1.1	La chambre sous vide . . . . .	211
1.1.2	La géométrie de détection . . . . .	213
<b>1.2</b>	<b>Analyses de cibles minces . . . . .</b>	<b>217</b>
1.2.1	Interprétations . . . . .	232
<b>1.3</b>	<b>Analyses de cibles épaisses . . . . .</b>	<b>235</b>
1.3.1	Interprétations . . . . .	245
<b>1.4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>248</b>

---

### 1.1 L'accélérateur AGLAE

L'accélérateur AGLAE (Accélérateur Grand Louvre pour les Analyses Elémentaires) du C2RMF est un accélérateur linéaire tandem de 2 MV de type pelletron construit par la société américaine "National Electrostatics Corporation" [11] (figure 1.1). Installé en 1987, il est susceptible de délivrer des faisceaux d'énergie pouvant atteindre 4 MeV pour des particules une fois chargées (protons) et 6 MeV pour des particules deux fois chargées (particules  $\alpha$ ). Cet accélérateur est muni de deux sources, une source radio-fréquence utilisée pour produire des ions négatifs d' $^3He$  et d' $^4He$ , et une

source Duoplasmatron produisant des ions négatifs d'hydrogène et de deutérium. Ces sources communiquent une énergie de 30 keV aux ions primaires afin de leur permettre d'entrer dans la cavité accélératrice. Elles sont suivies d'un aimant d'injection dont le champ réglable permet de choisir entre les deux sources et les différents faisceaux. Le principe de montée en tension des accélérateurs de type pelletron est dérivé de celui des accélérateurs Van de Graaff : des charges sont déposées sur les godets de deux chaînes tournant à grande vitesse qui les amènent sur l'électrode placée au centre de la cuve, comme le montre le schéma à la figure 1.2. L'électrode est chargée positivement et communique au faisceau de particules une énergie égale à la tension multipliée par l'état de charge des particules. Les ions injectés dans l'accélérateur sont le plus souvent chargés une fois négativement. Au niveau de l'électrode, les particules perdent leurs électrons par collision avec les molécules d'un gaz, appelé gaz éplucheur (argon à faible pression), injecté dans le tube accélérateur, et leur nouvel état de charge leur permet de subir une nouvelle accélération au moyen de la même électrode. L'énergie finale équivaut à  $(q-)V0 + (q-)V + (q+)V$  où  $q-$  et  $q+$  sont les états de charge successivement avant et après le passage dans le gaz éplucheur,  $V0$  la tension d'extraction et  $V$  la tension d'accélération. La cuve de l'accélérateur AGLAE dispose d'un blindage spécifique en plomb qui permet de travailler dans la salle de l'accélérateur en fonctionnement sans danger d'irradiation (à l'exception de la production de faisceaux de deutons qui génèrent des neutrons lors de collisions avec les collimateurs ; neutrons qui ne sont pas arrêtés par le blindage). Un aimant, placé à la suite de la cavité accélératrice, permet d'épurer le faisceau en masse et en énergie et de diriger le faisceau de particules dans une des trois lignes d'analyse choisie.



FIGURE 1.1 – AGLAE.

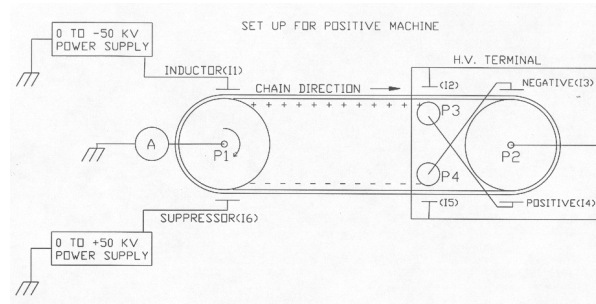


FIGURE 1.2 – Schéma de principe d'un pelletron.

Finalement, une microsonde “Oxford” permet de focaliser le faisceau jusqu’à des dimensions de l’ordre de 20 microns dans les meilleurs cas.

### 1.1.1 La chambre sous vide

Bien que la majorité des analyses sur l’accélérateur AGLAE soit conduite en faisceau extrait [63][64], quelques cas nécessitent une analyse sous vide. Pour minimiser l’absorption des rayons X et la dispersion en énergie du faisceau inhérente à l’extraction à l’air du faisceau et qui risque de dégrader inutilement la résolution en profondeur de l’analyse, les analyses ont été effectuées sous vide. La chambre sous vide d’AGLAE (figures 1.3 et 1.4) répond à un certain nombre de critères :

- elle peut s’adapter sur la ligne de micro faisceau afin de pouvoir effectuer des cartographies avec la meilleure résolution latérale possible. De plus, comme cette ligne est majoritairement utilisée pour le faisceau extrait, cette nouvelle chambre peut être mise en place et s’escamoter dans les meilleurs délais ;
- elle permet soit l’analyse sous vide, soit l’analyse en atmosphère contrôlée, en adaptant un nez d’extraction à l’intérieur de la chambre, puis en utilisant l’étanchéité de la chambre pour mettre l’échantillon sous l’atmosphère choisie ;
- le porte échantillon peut se déplacer dans les trois directions de l’espace et dispose d’une rotation (axe vertical) et cela de façon motorisée. La petite taille de la chambre interdisant l’introduction de platine de déplacement motorisée à l’intérieur, il a été décidé de se servir des déplacements du chevalet de positionnement du faisceau extrait en conce-

vant un système de liaison avec le porte-échantillon de la chambre ;

- elle peut être utilisée pour toutes les techniques IBA et donc peut être munie de différents détecteurs selon les cas : un détecteur Si(Li) de photons X, un détecteur HPGe de photons  $\gamma$ , un détecteur annulaire de particules (pour les grands angles de détection) et un autre détecteur de particules monté sur un dispositif de rotation pour régler l'angle de détection ;
- elle est équipée d'un pompage efficace pour une plus grande facilité et rapidité d'utilisation (mise sous vide en 30 minutes) ;
- elle est munie d'un couvercle transparent pour une bonne visibilité.

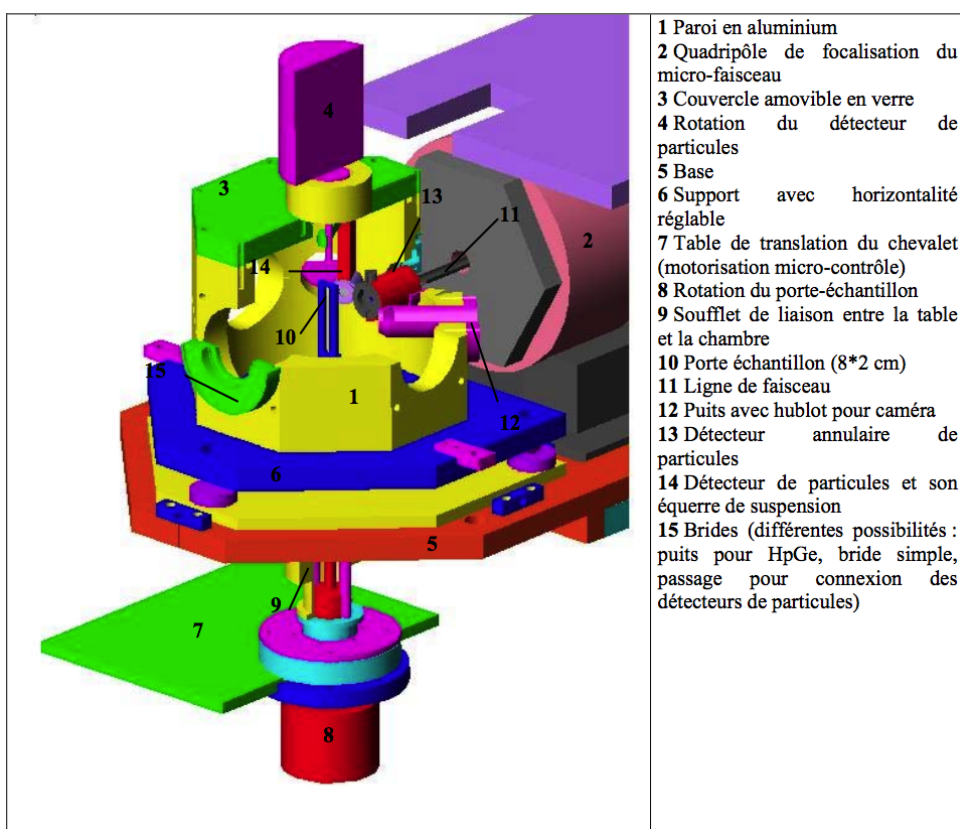


FIGURE 1.3 – Plan 3D de la chambre sous vide [65].

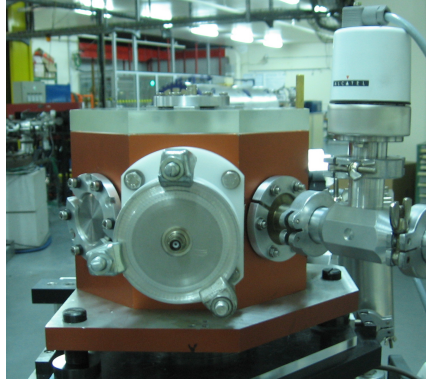


FIGURE 1.4 – Photographie de la chambre sous vide.

### 1.1.2 La géométrie de détection

La figure 1.5 rend compte de la géométrie de détection de la chambre sous vide. Afin de pouvoir acquérir les émissions secondaires, trois détecteurs ont été positionnés de manière à mettre en oeuvre les techniques PIXE, RBS et PIGE. Le détecteur X est introduit sous vide à  $45^\circ$  et protégé par l'utilisation d'un déflecteur réduit par rapport à celui utilisé à Liège puisque les énergies maximales des particules incidentes ne sont pas dans la même gamme. Il s'agit d'un détecteur Si(Li) "Gresham" (devenu "e2V") de  $10 \text{ mm}^2$  et de 145 eV de résolution à 5,9 keV possédant une fenêtre d'entrée "Moxtek" AP3.3. La fenêtre d'entrée du détecteur de Paris a une meilleure transmission théorique pour les éléments légers que le détecteur de Liège comme le montre la table 1.1 issu des données techniques constructeurs.

A côté du détecteur X, un détecteur à barrière de surface annulaire "Canberra" a été disposé dans le chemin du faisceau pour récupérer les particules rétrodiffusées par l'échantillon à un angle le plus proche de  $180^\circ$ . Pour les différents traitements de spectres, l'angle de  $170^\circ$  a été défini à l'aide d'un diaphragme. Un tube est placé au centre du diaphragme pour s'isoler du faisceau. La bonne résolution en énergie naturelle de l'accélérateur linéaire permet de s'affranchir de l'utilisation d'une analyse, pourtant indispensable lors de l'utilisation d'un accélérateur de type cyclotron. Un détecteur HPGe a également été disposé pour collecter les rayons  $\gamma$  émis par les échantillons. Ceux-ci sont positionnés sur un porte-porte échantillon motorisé permettant

Numéro atomique	Elément	Transmission (%)	
		AP3.3	AP3.7
14	Si	74	70
13	Al	75	72
11	Na	69	62
9	F	54	38
8	O	47	47
7	N	31	13
6	C	47	33
5	B	29	11
4	Be	9	1

TABLE 1.1 – Fenêtre d’entrée “Moxtek”.



FIGURE 1.5 – Géométrie de détection.

des déplacements en hauteur et latéraux. Une caméra relayée jusqu’à la salle de commande permet dès lors de positionner le faisceau micrométrique sur le point d’analyse. La dose est, quant à elle, directement intégrée sur le courant récupéré dans la chambre sous vide. De plus, le porte-échantillon peut être polarisé (-380V) pour éviter l’influence des électrons secondaires sur la



mesure du courant.

Dans la pratique, deux géométries différentes ont été employées lors des deux sessions d'analyses :

- Le 14 mai 2008.

Le choix d'une géométrie de détection "linéaire" pour le détecteur de rayons  $\gamma$  nécessite l'utilisation d'une cible épaisse, de béryllium dans le cas présent, pour arrêter le faisceau quand celui-ci est assez énergétique pour traverser totalement l'échantillon (figure 1.6).

- Le 12 juin 2008.

Afin de diminuer le bruit de fond de rayonnements  $\gamma$  et  $X$ , et la contribution des particules rétrodiffusées sur l'arrêt faisceau, le détecteur HPGe a été disposé à  $90^\circ$ . De ce fait, l'utilisation d'une cible "arrêt faisceau" n'est plus nécessaire (figure 1.7).

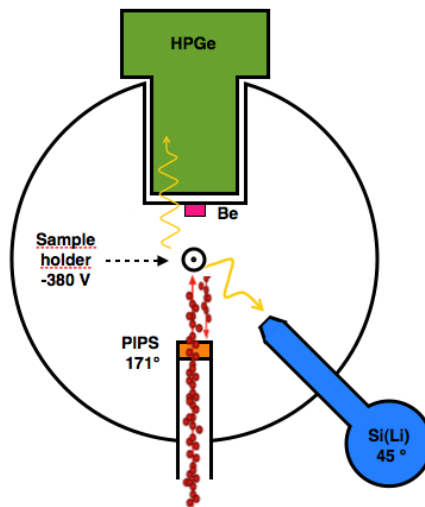


FIGURE 1.6 – Géométrie du 14.05.08.

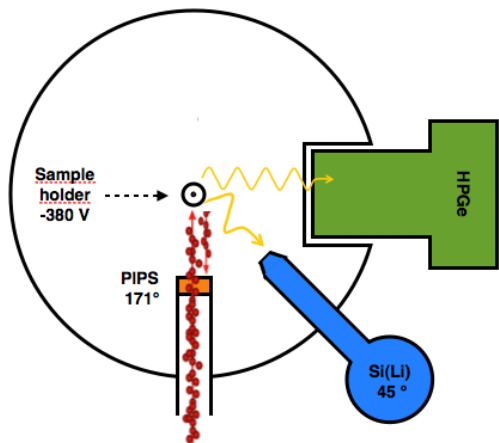


FIGURE 1.7 – Géométrie du 12.06.08.

Afin de comparer différents couples particule/énergie, plusieurs faisceaux ont été produits et guidés dans la chambre d’analyse. Comme le montre le tableau 1.2, des faisceaux de protons de 1,5 à 3 MeV, de particules  $\alpha$  de 3 à 6 MeV, complémentaires des faisceaux accessibles avec le cyclotron de Liège ont été employés. De surcroît, des faisceaux d’Hélium-3 de 2 à 6 MeV ont été envisagés. Le rapport énergie/masse, étant un des facteurs primordiaux pour l’ionisation des couches internes du matériau, a été conservé pour un faisceau pour les trois particules différentes : 1,5 MeV proton, 6 MeV  $\alpha$ , 4,5 MeV  ${}^3\text{He}$ .

Particule	Energie utilisée (MeV)	14 mai	12 juin
$\text{H}^+$	1,5		X
	2	X	
	3	X	
	3	X	
	4	X	
${}^4\text{He}^{2+}$	5		X
	6	X	X
	2		X
	3		X
	4,5		X
${}^3\text{He}^{2+}$	6	X	

TABLE 1.2 – Faisceaux réalisés lors des expériences parisiennes.

De plus deux configurations d'échantillons ont été envisagées lors des expériences : les cibles minces et les cibles épaisses.

## 1.2 Analyses de cibles minces

Les tableaux 1.3 et 1.4 recensent les cibles minces irradiées lors des expériences du 14 mai et du 12 juin 2008. Les cibles sont représentatives de l'ensemble du tableau périodique, allant de l'aluminium ( $Z=13$ ) au plomb ( $Z=82$ ), et de la gamme d'énergie des rayons X détectables, allant de 1,487 keV (Al) à 10,55 keV (Pb). Les raies K, L et M ont été envisagées lors de la réalisation des tableaux.

Elément	Epaisseur ( $\mu g/cm^2$ )
Al	39,9
KCl	46,4
SiO	40,1
$CaF_2$	43,6
Fe	45,7
Cu	43,5
ZnTe	45,8
Ag	42,6
Sn	46,4
Au	43,4
Pb	42,2

TABLE 1.3 – Liste des cibles minces analysées le 14 mai 2008.

Elément	Epaisseur ( $\mu g/cm^2$ )
Al	39,9
SiO	46,3
$CaF_2$	49
$CuS_x$	55,5
ZnTe	45,8
Sn	46,4
Au	43,4

TABLE 1.4 – Liste des cibles minces analysées le 12 juin 2008.

Les tableaux 1.5 reprennent quant à eux l'ensemble des résultats issus

du dépouillement réalisé avec GupixWin ([19]) des spectres X collectés. De plus, de part leur taille imposante, ceux-ci ont été divisés en deux parties et publiés sur deux pages.

Les deux premières colonnes reprennent les différents couples énergies/particules envisagés, alors que les quatre colonnes suivantes détaillent le rayonnement X issus de la cible d'intérêt. Afin de pouvoir comparer les éléments entre eux pour les différents couples énergies/particules, les résultats ont été normalisés à l'aide de la dose reprise en  $\mu C$  dans la colonne suivante. De plus, les expériences réalisées le 12 juin 2008 sont distinguées des autres grâce à un astérisque. La huitième colonne reprend l'intensité théorique pour l'élément considéré calculée à partir de la section efficace de production de rayons X théorique. Celle-ci sera comparée aux résultats expérimentaux publiés dans la colonne "Aire". Cette aire correspond au nombre de coups calculé sous le pic par le logiciel. Les deux premières colonnes de la deuxième partie du tableau reprennent l'efficacité intrinsèque du détecteur pour la détection du rayonnement X et le coefficient de transmission des rayons X au travers de la fenêtre du détecteur X. Les colonnes 4, 5 et 6 de la deuxième partie du tableau reprennent la limite de détection de l'élément calculé par GupixWin, le bruit de fond et le rapport entre l'intensité et le bruit de fond pour les pics correspondant à l'élément dans le spectre X.

$$LOD = 3\sigma; \sigma = \sqrt{B + O} + 0,01O \quad (1.1)$$

où  $B$  correspond au bruit de fond et  $O$  au recouvrement du pic de référence par un autre.

La dernière colonne reprend le facteur  $H$  (introduit dans la partie précédente) calculé pour corriger la géométrie de détection et ainsi obtenir la bonne concentration de la cible élémentaire analysée.

Afin de comparer les résultats des différents couples énergies/particules envisagés, les graphiques 1.8 à 1.10 reprennent les intensités normalisées pour chaque type de particules (protons,  $\alpha$ ,  $^3He$ ). Ce paramètre rend compte de la section efficace de production de rayons X expérimentale pour la géométrie choisie. Cependant, lors d'une analyse, une deuxième donnée importante est la limite de détection des éléments présents dans l'échantillon-cible. En effet, même si l'intensité du pic est importante, si le bruit de fond est encore plus important, la statistique ne sera pas suffisante pour quantifier ou même assurer la présence d'un élément dans une matrice [66]. Les graphiques 1.11 à 1.13 reprennent le rapport de l'intensité du pic divisée par le bruit de fond

---

sous le pic B afin d'interpréter les résultats et de définir le meilleur couple possible.

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ng/cm <sup>2</sup> )	Dose ( $\mu$ C)	Intensité théorique (/ $\mu$ C/ng/cm <sup>2</sup> )
H							
H	1,5*	Au	L	9,713	43400	0,15	13,88
H	1,5*	Au	M	2,123	43400	0,15	988,7
H	1,5*	Au	L	9,713	43400	0,3	13,88
H	1,5*	Au	M	2,123	43400	0,3	988,7
H	1,5*	Sn	L	3,444	46400	0,3	359,6
H	1,5*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	44,12
H	1,5*		L	3,769	30300	0,3	300,7
H	1,5*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	58,1
H	1,5*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	2935
H	1,5*	Fe	K	6,404	54500	0,3	141,4
H	1,5*	CaF2	K	3,692	33236	0,3	877,3
H	1,5*	CaF2	K	3,692	33236	0,3	877,3
H	1,5*	SiO	K	1,74	29500	0,3	5198
H	1,5*	Mg	K	1,254	55600	0,3	8929
H	1,5*	Al	K	1,487	39900	0,3	6549
H	2	Al	K	1,487	39900	0,45	7798
H	2	Al	K	1,487	39900	0,45	7798
H	2	K	K	3,314	24340	0,45	1727
H	2	K	K	3,314	24340	0,45	1727
H	2	Cl	K	2,622	22060	0,45	2867
H	2	Cl	K	2,622	22060	0,45	2867
H	2	SiO	K	1,74	25550	0,45	6352
H	2	CaF2	K	3,692	22380	0,45	1366
H	2	Fe	K	6,404	45700	0,45	264,7
H	2	Cu	K	8,048	43500	0,45	116,1
H	2	ZnTe	K	8,639	15500	0,45	89,22
H	2		L	3,769	30300	0,45	472
H	2	Ag	L	2,984	42600	0,45	1052
H	2	Sn	L	3,444	46400	0,45	624,1
H	2	Au	L	9,713	43400	0,45	23,22
H	2	Au	M	2,123	43400	0,45	1324
H	2	Au	L	9,713	43400	0,45	23,22
H	2	Au	M	2,123	43400	0,45	1324
H	3	Al	K	1,487	39900	0,45	8648
H	3	K	K	3,314	24340	0,45	2619
H	3	Cl	K	2,622	22060	0,45	3939
H	3	SiO	K	1,74	25550	0,45	7448
H	3	CaF2	K	3,692	22380	0,45	2170
H	3	Fe	K	6,404	45700	0,45	539,4
H	3	Cu	K	8,048	43500	0,45	262
H	3	ZnTe	K	8,639	15500	0,45	207,6
H	3		L	3,769	30300	0,45	777,8
H	3	Ag	L	2,984	42600	0,45	1584
H	3	Sn	L	3,444	46400	0,45	988,5

Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,9970	0,7785	60	10	11	5,5	915,5
0,9650	0,7467	4070	50	278	14,6	878,5
0,9970	0,7785	120	10	11	10,9	878,5
0,9650	0,7467	8380	50	278	30,1	903,5
0,9840	0,7639	4280	30	100	42,8	1138
0,9960	0,7713	180	20	44	4,1	1138
0,9870	0,7581	3010	40	178	16,9	1470,5
0,9980	0,7703	640	20	44	14,5	1103,5
0,9700	0,7514	7050	50	278	25,4	908
0,9960	0,7690	1730	30	100	17,3	974,5
0,9860	0,7573	4220	60	400	10,6	646,5
0,9860	0,7573	4760	20	44	108,2	729,5
0,9740	0,7315	31530	60	400	78,8	962
0,9430	0,5614	58530	150	2500	23,4	742
0,9620	0,7367	52510	70	544	96,5	945
0,9620	0,7367	22750	70	544	41,8	229
0,9620	0,7367	22890	50	278	82,3	230,5
0,9830	0,7526	1230	10	11	111,8	88
0,9830	0,7526	1610	10	11	146,4	115
0,9750	0,7358	1310	30	100	13,1	64
0,9750	0,7358	1970	30	100	19,7	97
0,6352	0,7315	13350	60	400	33,4	393,5
0,9860	0,7573	2860	10	11	260,0	278,5
0,9960	0,7690	1110	30	100	11,1	266
0,9980	0,7703	460	20	44	10,5	261,5
0,9960	0,7713	140	20	44	3,2	286
0,9870	0,7581	1580	30	100	15,8	328
0,8750	0,9413	3020	40	178	17,0	181,5
0,9840	0,7639	2740	20	44	62,3	279
0,9970	0,7785	70	10	11	6,4	185
0,9650	0,7467	4420	60	400	11,1	237
0,9970	0,7785	100	10	11	9,1	284
0,9650	0,7467	4570	30	100	45,7	245,5
0,9620	0,7367	25070	80	711	35,3	228
0,9830	0,7632	940	20	44	21,4	43,5
0,9750	0,7569	940	30	100	9,4	33
0,6352	0,7315	15440	60	400	38,6	388
0,9860	0,7573	4600	30	100	46,0	282
0,9960	0,7690	2510	30	100	25,1	295
0,9980	0,7703	1060	20	44	24,1	268,5
0,9960	0,7713	280	10	11	25,5	254
0,9870	0,7581	2650	20	44	60,2	334,5
0,8750	0,9413	4890	40	178	27,5	195,5
0,9840	0,7639	4230	50	278	15,2	272,5

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ng/cm <sup>2</sup> )	Dose ( $\mu$ C)	Intensité théorique (/ $\mu$ C/ng/cm <sup>2</sup> )
H	3	Au	L	9,713	43400	0,45	55,36
H	3	Au	M	2,123	43400	0,45	1789
H	3	Au	L	9,713	43400	0,45	55,36
H	3	Au	M	2,123	43400	0,45	1789
<sup>4</sup> He							
<sup>4</sup> He	3	Al	K	1,487	39900	0,3	13108
<sup>4</sup> He	3	K	K	3,314	24340	0,3	1017
<sup>4</sup> He	3	K	K	3,314	24340	0,3	1017
<sup>4</sup> He	3	Cl	K	2,622	22060	0,3	2323
<sup>4</sup> He	3	Cl	K	2,622	22060	0,3	2323
<sup>4</sup> He	3	SiO	K	1,74	25550	0,3	8800
<sup>4</sup> He	3	CaF2	K	3,692	22380	0,3	695,5
<sup>4</sup> He	3	CaF2	K	3,692	22380	0,3	695,5
<sup>4</sup> He	3	Fe	K	6,404	45700	0,3	71,99
<sup>4</sup> He	3	Cu	K	8,048	43500	0,3	25,74
<sup>4</sup> He	3	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	18,61
<sup>4</sup> He	3		L	3,769	30300	0,3	289,7
<sup>4</sup> He	3	Ag	L	2,984	42600	0,3	748,2
<sup>4</sup> He	3	Sn	L	3,444	46400	0,3	414,5
<sup>4</sup> He	3	Au	L	9,713	43400	0,3	7,61
<sup>4</sup> He	3	Au	M	2,123	43400	0,3	1675
<sup>4</sup> He	4	Al	K	1,487	39900	0,3	19383
<sup>4</sup> He	4	SiO	K	1,74	25550	0,3	13875
<sup>4</sup> He	4	CaF2	K	3,692	22380	0,3	1468
<sup>4</sup> He	4	Fe	K	6,404	45700	0,3	174,9
<sup>4</sup> He	4	Cu	K	8,048	43500	0,3	65,14
<sup>4</sup> He	4	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	47,62
<sup>4</sup> He	4		L	3,769	30300	0,3	543,3
<sup>4</sup> He	4	Ag	L	2,984	42600	0,3	1364
<sup>4</sup> He	4	Sn	L	3,444	46400	0,3	762
<sup>4</sup> He	4	Au	L	9,713	43400	0,3	17,48
<sup>4</sup> He	4	Au	M	2,123	43400	0,3	2487
<sup>4</sup> He	4	Pb	L	10,55	42200	0,3	12,15
<sup>4</sup> He	4	Pb	M	2,346	42200	0,3	1896
<sup>4</sup> He	5*	Au	L	9,713	43400	0,3	31,51
<sup>4</sup> He	5*	Au	M	2,123	43400	0,3	3298
<sup>4</sup> He	5*	Sn	L	3,444	46400	0,3	1168
<sup>4</sup> He	5*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	94,06
<sup>4</sup> He	5*		L	3,769	30300	0,3	847,5
<sup>4</sup> He	5*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	117,1
<sup>4</sup> He	5*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	9194
<sup>4</sup> He	5*	Fe	K	6,404	54500	0,3	299,2
<sup>4</sup> He	5*	Fe	K	6,404	54500	0,3	299,2
<sup>4</sup> He	5*	CaF2	K	3,692	33236	0,3	2420
<sup>4</sup> He	5*	Sio	K	1,74	29500	0,3	18046



Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,9970	0,7785	260	10	11	23,6	308
0,9650	0,7467	5840	50	278	21,0	232
0,9970	0,7785	280	20	44	6,4	330
0,9650	0,7467	5890	50	278	21,2	234
0,9620	0,7367	38690	80	711	54,4	348
0,9830	0,7526	510	20	44	11,6	92
0,9830	0,7526	590	20	44	13,4	108
0,9750	0,7358	780	30	100	7,8	71
0,9750	0,7358	1030	30	100	10,3	93
0,6352	0,7315	18580	60	400	46,5	593
0,9860	0,7573	1270	20	44	28,9	363,5
0,9860	0,7573	1240	30	100	12,4	354
0,9960	0,7690	350	20	44	8,0	464
0,9980	0,7703	100	10	11	9,1	379,5
0,9960	0,7713	20	10	11	1,8	263
0,9870	0,7581	820	20	44	18,6	416,5
0,8750	0,9413	2200	30	100	22,0	280
0,9840	0,7639	1760	20	44	40,0	406
0,9970	0,7785	20	10	11	1,8	250
0,9650	0,7467	6430	50	278	23,1	409
0,9620	0,7367	61880	160	2844	21,8	376
0,6352	0,7315	31890	60	400	79,7	645,5
0,9860	0,7573	2990	20	44	68,0	406
0,9960	0,7690	800	20	44	18,2	436
0,9980	0,7703	260	10	11	23,6	401,5
0,9960	0,7713	90	10	11	8,2	546
0,9870	0,7581	1760	20	44	40,0	477
0,8750	0,9413	4080	40	178	22,9	284
0,9840	0,7639	3320	30	100	33,2	417
0,9970	0,7785	20	20	44	0,5	85,5
0,9650	0,7467	9780	70	544	18,0	419
0,9970	0,7875	0	10	11	0,0	26
0,9710	0,7522	6210	30	100	62,1	354
0,9970	0,7785	100	20	44	2,3	318
0,9650	0,7467	10950	90	900	12,2	354
0,9840	0,7639	4540	20	44	103,2	371
0,9960	0,7713	80	20	44	1,8	251,5
0,9870	0,7581	3750	60	400	9,4	651,5
0,9980	0,7703	470	20	44	10,7	403
0,9700	0,7514	9020	50	278	32,4	371
0,9960	0,7690	1420	20	44	32,3	378,5
0,9960	0,7690	1380	20	44	31,4	369
0,9860	0,7573	4760	20	44	108,2	264
0,9740	0,7315	41070	110	1344	30,6	361

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ng/cm <sup>2</sup> )	Dose ( $\mu$ C)	Intensité théorique (/ $\mu$ C/ng/cm <sup>2</sup> )
<sup>4</sup> He	5*	Mg	K	1,254	55600	0,3	33980
<sup>4</sup> He	5*	Al	K	1,487	39900	0,3	23868
<sup>4</sup> He	5*	Al	K	1,487	39900	0,3	23868
<sup>4</sup> He	6*	Au	L	9,713	43400	0,3	49,92
<sup>4</sup> He	6*	Au	M	2,123	43400	0,3	4067
<sup>4</sup> He	6*	Au	L	9,713	43400	0,3	49,92
<sup>4</sup> He	6*	Au	M	2,123	43400	0,3	4067
<sup>4</sup> He	6*	Sn	L	3,444	46400	0,3	1616
<sup>4</sup> He	6*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	158,8
<sup>4</sup> He	6*	ZnTe	L	3,769	30300	0,3	1193
<sup>4</sup> He	6*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	194,8
<sup>4</sup> He	6*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	11847
<sup>4</sup> He	6*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	194,8
<sup>4</sup> He	6*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	11847
<sup>4</sup> He	6*	Fe	K	6,404	54500	0,3	479,1
<sup>4</sup> He	6*	Fe	K	6,404	54500	0,3	479,1
<sup>4</sup> He	6*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6*	Sio	K	1,74	29500	0,3	21592
<sup>4</sup> He	6*	Sio	K	1,74	29500	0,3	21592
<sup>4</sup> He	6*	Mg	K	1,254	55600	0,3	38144
<sup>4</sup> He	6*	Mg	K	1,254	55600	0,3	38144
<sup>4</sup> He	6*	Al	K	1,487	39900	0,3	27644
<sup>4</sup> He	6*	Al	K	1,487	39900	0,3	27644
<sup>4</sup> He	6	Al	K	1,487	39900	0,3	28279
<sup>4</sup> He	6	Al	K	1,487	39900	0,3	28279
<sup>4</sup> He	6	SiO	K	1,74	25550	0,3	21882
<sup>4</sup> He	6	SiO	K	1,74	25550	0,3	21882
<sup>4</sup> He	6	SiO	K	1,74	25550	0,3	21882
<sup>4</sup> He	6	CaF2	K	3,692	22380	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6	CaF2	K	3,692	22380	0,3	3449
<sup>4</sup> He	6	Fe	K	6,404	45700	0,3	526,9
<sup>4</sup> He	6	Fe	K	6,404	45700	0,3	526,9
<sup>4</sup> He	6	Cu	K	8,048	43500	0,3	212,5
<sup>4</sup> He	6	Cu	K	8,048	43500	0,3	212,5
<sup>4</sup> He	6	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	158,8
<sup>4</sup> He	6		L	3,769	30300	0,3	1193
<sup>4</sup> He	6	Ag	L	2,984	42600	0,3	2808
<sup>4</sup> He	6	Ag	L	2,984	42600	0,3	2808
<sup>4</sup> He	6	Ag	L	2,984	42600	0,3	2808
<sup>4</sup> He	6	Sn	L	3,444	46400	0,3	1616
<sup>4</sup> He	6	Au	L	9,713	43400	0,3	49,92
<sup>4</sup> He	6	Au	M	2,123	43400	0,3	4067
<sup>4</sup> He	6	Pb	L	10,55	42200	0,3	35,3
<sup>4</sup> He	6	Pb	M	2,346	42200	0,3	3186

Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,9430	0,5614	85910	190	4011	21,4	286
0,9620	0,7367	73570	80	711	103,5	363
0,9620	0,7367	72570	130	1878	38,6	358,5
0,9970	0,7785	170	10	11	15,5	330
0,9650	0,7467	11930	70	544	21,9	313
0,9970	0,7785	170	20	44	3,9	346,5
0,9650	0,7467	12210	70	544	22,4	320
0,9840	0,7639	5790	50	278	20,8	342,5
0,9960	0,7713	200	20	44	4,5	347,5
0,9870	0,7581	3990	10	11	362,7	492,5
0,9980	0,7703	580	20	44	13,2	299
0,9700	0,7514	9470	60	400	23,7	302
0,9980	0,7703	570	20	44	13,0	290
0,9700	0,7514	9950	40	178	55,9	317,5
0,9960	0,7690	2030	20	44	46,1	338
0,9960	0,7690	2010	20	44	45,7	335
0,9860	0,7573	7320	30	100	73,2	285
0,9860	0,7573	7060	20	44	160,5	275
0,9860	0,7573	6530	30	100	65,3	254
0,9860	0,7573	5740	40	178	32,2	223,5
0,9740	0,7315	47020	40	178	264,2	345,5
0,9740	0,7315	46150	80	711	64,9	339
0,9430	0,5614	105390	170	3211	32,8	313
0,9430	0,5614	88050	140	2178	40,4	261,5
0,9620	0,7367	70670	130	1878	37,6	301
0,9620	0,7367	73390	80	711	103,2	313
0,9620	0,7367	84400	140	2178	38,8	352
0,9620	0,7367	79240	100	1111	71,3	330
0,6352	0,7315	48540	150	2500	19,4	623
0,6352	0,7315	46110	140	2178	21,2	592
0,6352	0,7315	44370	150	2500	17,7	569,5
0,9860	0,7573	6610	50	278	23,8	382,5
0,9860	0,7573	6200	40	178	34,8	358,5
0,9960	0,7690	2180	30	100	21,8	394,5
0,9960	0,7690	2380	20	44	54,1	431
0,9980	0,7703	830	3	1	830,0	390,5
0,9980	0,7703	710	20	44	16,1	335
0,9960	0,7713	190	10	11	17,3	338
0,9870	0,7581	3630	20	44	82,5	447
0,8750	0,9413	7770	70	544	14,3	263
0,8750	0,9413	9790	120	1600	6,1	331
0,8750	0,9413	7240	60	400	18,1	245
0,9840	0,7639	6910	40	178	38,8	409
0,9970	0,7785	200	10	11	18,2	393
0,9650	0,7467	12210	100	1111	11,0	320
0,9970	0,7875	160	10	11	14,5	458
0,9710	0,7522	9010	110	1344	6,7	306

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ng/cm <sup>2</sup> )	Dose ( $\mu$ C)	Intensité théorique (/ $\mu$ C/ng/cm <sup>2</sup> )
<sup>3</sup> He							
<sup>3</sup> He	2*	Au	L	9,713	43400	0,3	4,75
<sup>3</sup> He	2*	Au	M	2,123	43400	0,3	1380
<sup>3</sup> He	2*	Sn	L	3,444	46400	0,3	307,4
<sup>3</sup> He	2*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	11,89
<sup>3</sup> He	2*		L	3,769	30300	0,3	212,4
<sup>3</sup> He	2*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	15,57
<sup>3</sup> He	2*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	2687
<sup>3</sup> He	2*	Fe	K	6,404	54500	0,3	42,8
<sup>3</sup> He	2*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	486,4
<sup>3</sup> He	2*	Sio	K	1,74	29500	0,3	6729
<sup>3</sup> He	2*	Mg	K	1,254	55600	0,3	17163
<sup>3</sup> He	2*	Al	K	1,487	39900	0,3	10092
<sup>3</sup> He	3*	Au	L	9,713	43400	0,3	16,52
<sup>3</sup> He	3*	Au	M	2,123	43400	0,3	2449
<sup>3</sup> He	3*	Sn	L	3,444	46400	0,3	749,1
<sup>3</sup> He	3*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	46,2
<sup>3</sup> He	3*		L	3,769	30300	0,3	532,9
<sup>3</sup> He	3*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	46,2
<sup>3</sup> He	3*		L	3,769	30300	0,3	532,9
<sup>3</sup> He	3*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	57,51
<sup>3</sup> He	3*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	6245
<sup>3</sup> He	3*	Fe	K	6,404	54500	0,3	153
<sup>3</sup> He	3*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	1446
<sup>3</sup> He	3*	Sio	K	1,74	29500	0,3	13263
<sup>3</sup> He	3*	Mg	K	1,254	55600	0,3	28169
<sup>3</sup> He	3*	Mg	K	1,254	55600	0,3	28169
<sup>3</sup> He	3*	Al	K	1,487	39900	0,3	18447
<sup>3</sup> He	4,5*	Au	L	9,713	43400	0,3	47,98
<sup>3</sup> He	4,5*	Au	M	2,123	43400	0,3	4025
<sup>3</sup> He	4,5*	Sn	L	3,444	46400	0,3	1588
<sup>3</sup> He	4,5*	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	155,3
<sup>3</sup> He	4,5*		L	3,769	30300	0,3	1169
<sup>3</sup> He	4,5*	CuSx	K	8,048	43400	0,3	189,3
<sup>3</sup> He	4,5*	CuSx	K	2,308	12100	0,3	11429
<sup>3</sup> He	4,5*	Fe	K	6,404	54500	0,3	475
<sup>3</sup> He	4,5*	CaF2	K	3,692	33200	0,3	3416
<sup>3</sup> He	4,5*	Sio	K	1,74	29500	0,3	21419
<sup>3</sup> He	4,5*	Mg	K	1,254	55600	0,3	37905
<sup>3</sup> He	4,5*	Al	K	1,487	39900	0,3	27891

Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,9970	0,7785	20	10	11	1,8	402
0,9650	0,7467	6500	50	278	23,4	502
0,9840	0,7639	1600	20	44	36,4	498
0,9960	0,7713	10	10	11	0,9	345,5
0,9870	0,7581	760	20	44	17,3	526
0,9980	0,7703	70	10	11	6,4	477,5
0,9700	0,7514	2880	30	100	28,8	406
0,9960	0,7690	220	10	11	20,0	405
0,9860	0,7573	1030	30	100	10,3	285,5
0,9740	0,7315	17090	40	178	96,0	403
0,9430	0,5614	47410	140	2178	21,8	313
0,9620	0,7367	36080	80	711	50,7	421,5
0,9970	0,7785	70	10	11	6,4	422
0,9650	0,7467	8780	60	400	22,0	382
0,9840	0,7639	3240	10	11	294,5	413
0,9960	0,7713	60	10	11	5,5	370
0,9870	0,7581	2130	50	278	7,7	588,5
0,9960	0,7713	60	20	44	1,4	335
0,9870	0,7581	2220	40	178	12,5	612
0,9980	0,7703	240	10	11	21,8	417
0,9700	0,7514	6520	50	278	23,5	395
0,9960	0,7690	710	20	44	16,1	369
0,9860	0,7573	2830	40	178	15,9	263
0,9740	0,7315	29710	70	544	54,6	355
0,9430	0,5614	71480	160	2844	25,1	287,5
0,9430	0,5614	74560	210	4900	15,2	300
0,9620	0,7367	57640	110	1344	42,9	368
0,9970	0,7785	130	10	11	11,8	267
0,9650	0,7467	11640	70	544	21,4	308
0,9840	0,7639	5580	30	100	55,8	336
0,9960	0,7713	180	10	11	16,4	333
0,9870	0,7581	4270	50	278	15,4	537
0,9980	0,7703	670	10	11	60,9	351,5
0,9700	0,7514	10590	90	900	11,8	350
0,9960	0,7690	2100	20	44	47,7	354
0,9860	0,7573	6200	40	178	34,8	244
0,9740	0,7315	45560	100	1111	41,0	337,5
0,9430	0,5614	91030	210	4900	18,6	272
0,9620	0,7367	76800	130	1878	40,9	324,5

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ng/cm <sup>2</sup> )	Dose (μC)	Intensité théorique (/μC/ng/cm <sup>2</sup> )
<sup>3</sup> He	6	Al	K	1,487	39900	0,3	32814
<sup>3</sup> He	6	SiO	K	1,74	25550	0,3	26624
<sup>3</sup> He	6	CaF2	K	3,692	22380	0,3	5468
<sup>3</sup> He	6	Fe	K	6,404	45700	0,3	1006
<sup>3</sup> He	6	Cu	K	8,048	43500	0,3	432,9
<sup>3</sup> He	6	ZnTe	K	8,639	15500	0,3	329,7
<sup>3</sup> He	6		L	3,769	30300	0,3	1856
<sup>3</sup> He	6	Ag	L	2,984	42600	0,3	4136
<sup>3</sup> He	6	Sn	L	3,444	46400	0,3	2451
<sup>3</sup> He	6	Au	L	9,713	43400	0,3	94,3
<sup>3</sup> He	6	Au	M	2,123	43400	0,3	5356
<sup>3</sup> He	6	Pb	L	10,55	42200	0,3	67,53
<sup>3</sup> He	6	Pb	M	2,346	42200	0,3	4300

Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,9620	0,7367	75630	120	1600	47,3	272
0,6352	0,7315	44770	140	2178	20,6	472
0,9860	0,7573	9380	50	278	33,7	342
0,9960	0,7690	3370	10	11	306,4	319
0,9980	0,7703	1320	20	44	30,0	305
0,9960	0,7713	390	20	44	8,9	332
0,9870	0,7581	4210	20	44	95,7	334
0,8750	0,9413	8290	70	544	15,2	190,5
0,9840	0,7639	7640	40	178	42,9	298
0,9970	0,7785	340	20	44	7,7	362
0,9650	0,7467	14230	100	1111	12,8	283
0,9970	0,7875	190	20	44	4,3	290
0,9710	0,7522	9870	90	900	11,0	248

TABLE 1.5 – Tableaux récapitulatifs des résultats du dépouillement des spectres X des cibles minces.

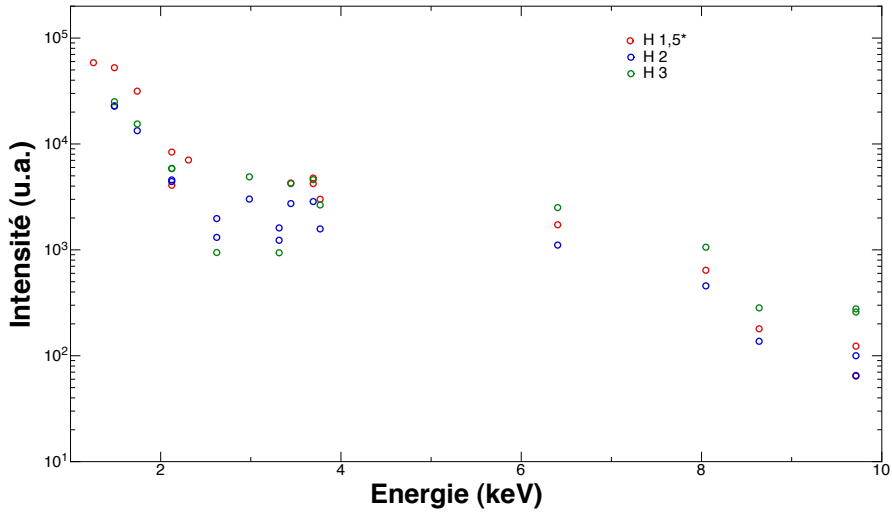


FIGURE 1.8 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons.

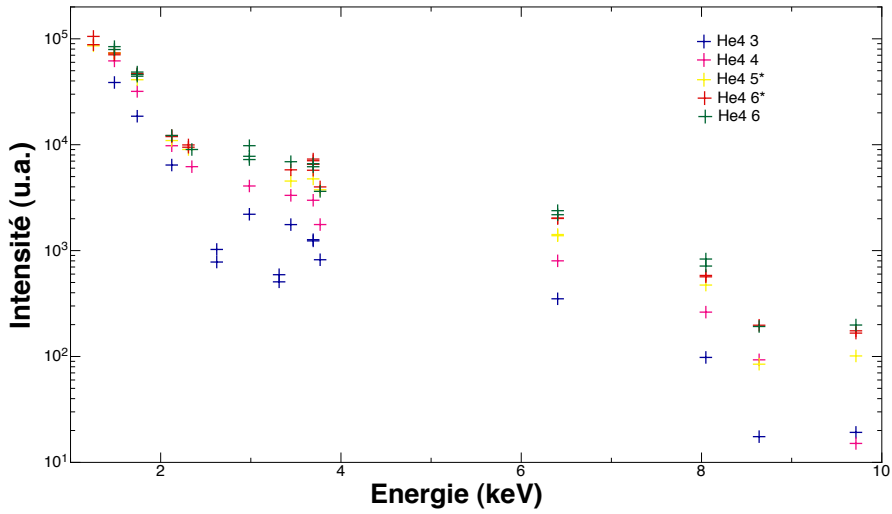


FIGURE 1.9 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules  $\alpha$ .

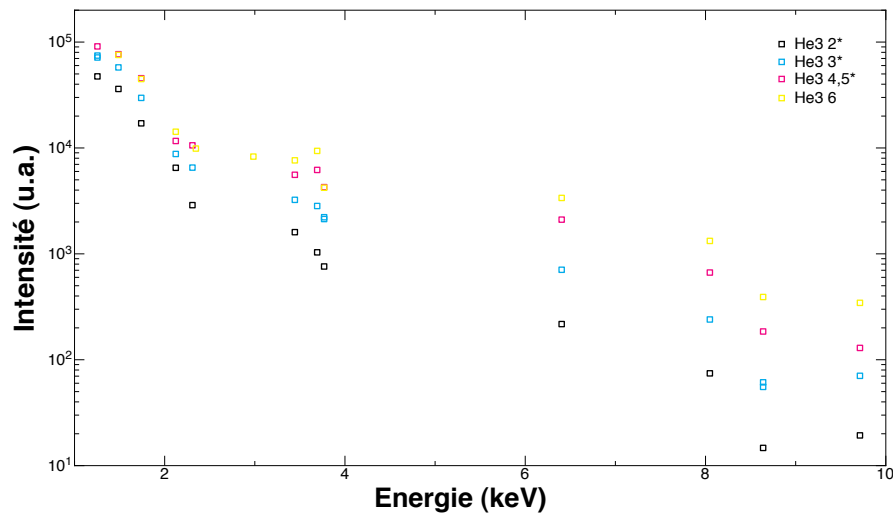


FIGURE 1.10 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les  $^3\text{He}$ .

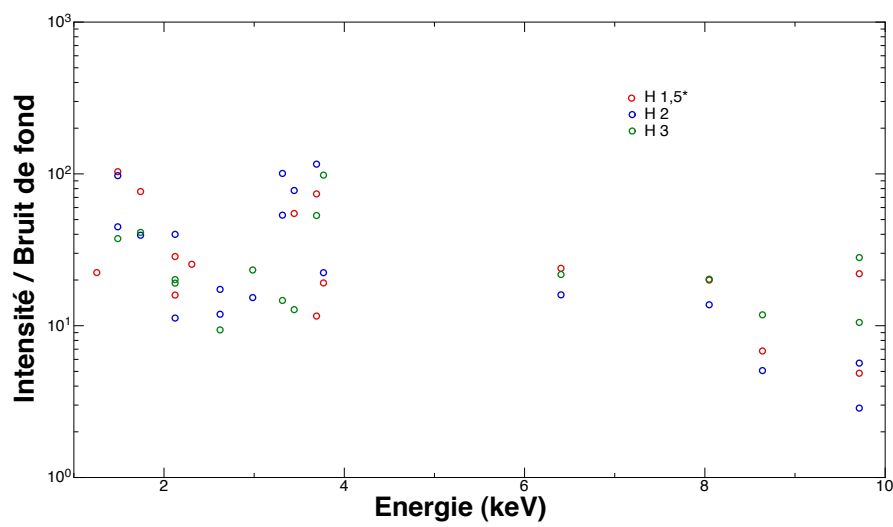


FIGURE 1.11 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons.



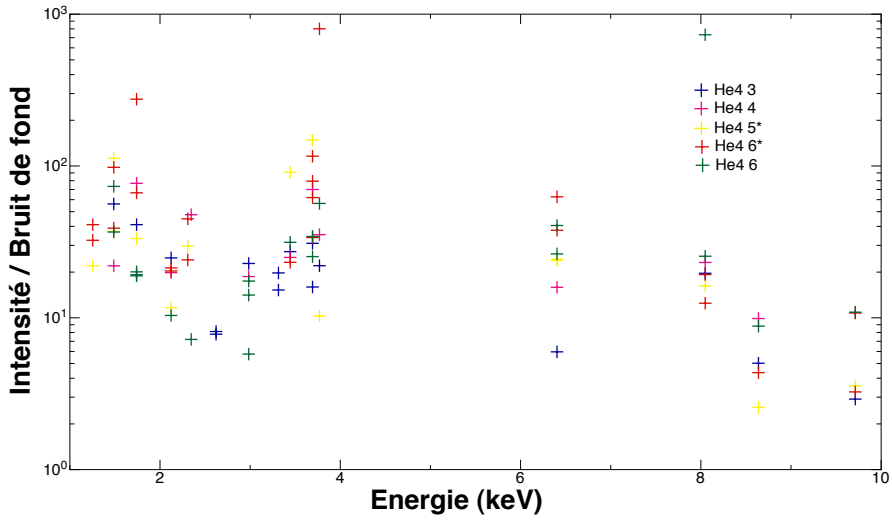


FIGURE 1.12 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules  $\alpha$ .

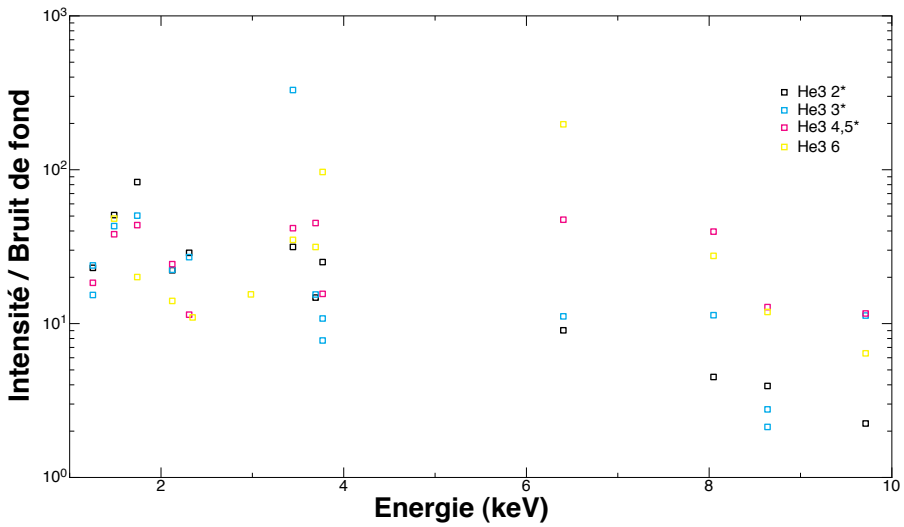


FIGURE 1.13 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les  ${}^3\text{He}$ .

### 1.2.1 Interprétations

#### Intensité

La théorie nous apprend que dans la gamme d'énergies considérée, la section efficace de production de rayons X augmente avec l'énergie des particules incidentes. De ce fait, l'aire (ou l'intensité) des pics sur le spectre X suit théoriquement le même comportement [1].

Dans le cas des protons, ce principe ne semble pas être respecté. Il faut en effet, ici, tenir compte des deux géométries de détection différentes utilisées lors des deux jours d'expérience. Pour rappel, les expériences du 12 juin sont annotées d'un astérisque. L'atténuation des rayons X ne diffère que très peu, les filtres n'ayant pas été modifiés et les expériences ayant été réalisées sous vide. Cependant, l'angle solide de détection, c'est-à-dire la distance entre le cristal du détecteur et l'échantillon, a elle été modifiée. Le graphique 1.8 montre une influence plus importante de la géométrie de détection sur les éléments légers au travers d'une intensité maximale pour le faisceau de moindre énergie, de 1,5 MeV. Pour les faisceaux de 2 et 3 MeV, utilisés dans une configuration identique, l'intensité des rayons X est bien en accord avec la théorie pour l'ensemble des raies K, L et M. Ce résultat est valide pour l'ensemble des éléments, sauf pour la cible mince de KCl. Les deux analyses n'étant pas réalisées au même endroit sur l'échantillon cible de par la taille micrométrique du faisceau, ces erreurs laissent plutôt croire à une détérioration importante de la cible qui n'a d'ailleurs pas été ré-utilisée lors des expériences du 12 juin.

Dans le cas des particules  $\alpha$ , les expériences sont en meilleur accord avec la théorie. Les intensités pour le faisceau de 3 MeV sont très faibles et augmentent légèrement pour le faisceau de 4 MeV pour l'ensemble des éléments. Le faisceau de 5 MeV donne des résultats proche des faisceaux de plus hautes énergies pour les éléments légers mais l'intensité est inférieure pour les éléments plus lourds. Par contre, les deux faisceaux de 6 MeV réalisés dans des configurations différentes sont en bon accord sur l'ensemble de la gamme d'énergie des rayons X comme le montre le graphique 1.9.

Dans le cas des particules d' $^3\text{He}$ , le comportement des différents faisceaux est bien distinct. L'intensité des pics augmente de manière sensible avec l'augmentation de l'énergie des particules incidentes, comme le montre le graphique 1.10. L'intensité du faisceau de 2 MeV est bel et bien la plus

faible tandis que l'intensité du faisceau de 6 MeV est la plus grande sur l'ensemble de la gamme d'énergie des rayons X. Cependant, aux très faibles énergies, le faisceau de 4,5 MeV a un comportement proche du faisceau de 6 MeV. Cette comparaison s'arrête assez rapidement pour les éléments plus lourds, de rayons X supérieurs à 3 keV.

L'objectif de ces expériences n'est évidemment pas uniquement de vérifier la corrélation entre l'énergie des particules incidentes et l'intensité du pic de rayons X, mais également de définir le meilleur couple particule/énergie à utiliser lors des analyses industrielles ou du patrimoine culturel. L'ensemble des différents faisceaux utilisés est discuté selon deux critères :

- Un rapport énergie/masse constant pour les différentes particules.

Les graphiques mettent en évidence l'avantage des faisceaux d'hélium, de 6 MeV  $\alpha$  et de 4,5 MeV  ${}^3\text{He}$ , pour les rayons X de faibles énergies. Cet avantage tend cependant à se réduire à plus haute énergie, où le faisceau de 1,5 MeV proton adopte un comportement plus proche des autres.

- L'intensité maximale pour les différentes particules.

Pour les rayons X de faible énergie, le faisceau de protons de 3 MeV montre une intensité plus faible par rapport aux faisceaux de 6 MeV  $\alpha$  et 6 MeV  ${}^3\text{He}$ , qui ont un comportement relativement similaire. A plus haute énergie, la tendance est modifiée. Le faisceau de particules  $\alpha$  montre les moins bons résultats, suivi du faisceau de proton. L'intensité maximale est observée pour le faisceau d' ${}^3\text{He}$ .

### Intensité/bruit de fond

Au cours des différentes expériences, des variations de géométrie sont inévitables. D'une part, elles sont causées par la modification de la géométrie de détection et de la position du détecteur, mais également par la difficulté d'analyser exactement le même point de l'échantillon-cible au vu de la taille micrométrique du faisceau. Il se peut que l'échantillon ait des variations de concentrations à cette échelle. L'utilisation de faisceau millimétrique diminue cet effet. Pour tenir compte de ce phénomène, un deuxième paramètre se doit d'être envisagé : le rapport de l'intensité du pic divisée par le bruit

de fond. De plus, l'objectif du travail est de trouver le faisceau qui aura la meilleure précision (une statistique importante) mais également la meilleure limite de détection (le bruit de fond le plus faible).

Dans le cas des protons, le graphique 1.11 met en évidence des résultats meilleurs pour les faisceaux d'énergies plus faibles, de 1,5 et 2 MeV. Tandis que cette tendance s'inverse, à l'avantage du faisceau de 3 MeV pour les plus hautes énergies. Le faisceau de 3 MeV semble donc être le meilleur compromis, de part une intensité plus importante et un meilleur rapport aux hautes énergies.

Dans le cas des particules  $\alpha$ , la tendance est la même pour toutes les énergies des rayons X. En plus d'avoir la meilleure intensité, le faisceau de 6 MeV a le meilleur rapport comme le montre le graphique 1.12.

Le cas des  ${}^3\text{He}$  est plus complexe. En effet, trois tendances peuvent être dégagées comme le montre le graphique 1.13. Il n'est pas étonnant de voir le faisceau de 2 MeV donner de meilleurs résultats aux faibles énergies de part l'augmentation du nombre de réactions nucléaires envisageables sur les éléments légers avec l'augmentation de l'énergie des particules incidentes. La deuxième tendance voit le faisceau de 6 MeV s'imposer dans une gamme d'énergie intermédiaire, tandis que le faisceau de 4,5 MeV prend l'avantage aux hautes énergies. Le meilleur compromis semble tout de même être le faisceau de 4,5 MeV.

La comparaison des faisceaux ayant le même rapport énergie/masse ne montre aucune tendance.

## Conclusion

En conclusion, les résultats montrent bien l'intérêt de choisir et d'adapter le couple énergie/particule du faisceau aux éléments constitutifs des cibles minces. Pour les éléments légers, le faisceau de particules  $\alpha$  de 6 MeV sera préféré tandis que pour les énergies intermédiaires le faisceau d' ${}^3\text{He}$  de 6 MeV pourrait être choisi. Dans la pratique, il n'est pas toujours aisé ou possible de produire des faisceaux d' ${}^3\text{He}$ , essentiellement pour des raisons financières. Pour les éléments plus lourds, le faisceau de protons de 3 MeV est la meilleure solution.

### 1.3 Analyses de cibles épaisses

La perte d'énergie des particules incidentes et l'atténuation des rayons X dans la matière sont négligés dans le cas des cibles minces. Cependant, dans le cas des cibles épaisses, qui sont les plus courantes dans la réalisation d'analyses pour l'industrie ou dans le domaine du patrimoine culturel, ces effets ne peuvent pas être négligés. Les particules incidentes sont ralenties dans la matière au travers du pouvoir d'arrêt, introduit dans la partie dédiée aux méthodes. Ce pouvoir d'arrêt est directement lié à la vitesse de la particule, c'est-à-dire à son l'énergie et à sa masse. Les protons de masse 1 u.m.a d'une énergie de 3 MeV traverseront donc plus de matière avant d'être totalement arrêtés que des particules  $\alpha$  de même énergie. Le rapport des masses étant de quatre, il faudra donc des particules  $\alpha$  quatre fois plus énergétique pour obtenir le même parcours dans la cible. Le tableau 1.6 reprend la densité et l'épaisseur de l'oxyde de silicium, déposé sur le substrat de silicium, mesurées par la méthode RBS pour les trois types de particules à des rapports énergie-masse identique : 1,5 MeV proton, 4,5 MeV  $^3\text{He}$  et 6 MeV  $\alpha$ . L'épaisseur moyenne de 1,24  $\mu\text{m}$  et la densité moyenne de 1,83 g/cm<sup>2</sup> ont été utilisées dans le calcul des parcours. Le tableau 1.7 reprend l'ensemble des cibles épaisses analysées et les parcours calculés grâce au logiciel "Pyrrole" pour les différents couples particule/énergie. S'il apparaît tout de même de légères variations de parcours pour les couples de rapport énergie/masse identiques, ceux-ci peuvent être considérés comme similaires. D'autres échantillons plus complexes ont également été analysés, comme des céramiques lustrées qui feront l'objet d'une étude complète qui sera publiée par A. Climent-Font.

Trois paramètres doivent être donc pris en compte lors de l'interprétation et de la comparaison des différents faisceaux :

- l'intensité du pic ;
- le rapport intensité du pic divisé par le bruit de fond ;
- le parcours des particules incidentes dans la matière.

De plus, si l'effet n'est pas discuté ici, il faut également avoir en tête que les rayons X émis en fin de parcours seront plus atténués que ceux émis à la surface de l'échantillon et contribueront donc moins à l'augmentation de l'intensité du pic de l'élément d'intérêt.

Les tableaux 1.8 reprennent les résultats des spectres X des cibles épaisses

RBS	Particule	Energie (MeV)	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Epaisseur fine (μm)
SiO2/Si	<sup>4</sup> He	3	1,8	1,34 (±1%)
	H	1,5	1,75	1,11 (±1%)
	<sup>3</sup> He	4,5	1,95	1,28 (±1%)
Moyenne			1,83	1,24

TABLE 1.6 – Estimation de l'épaisseur de la couche d'oxyde de silicium.

Elément	Parcours (μm)			
	Proton			
	1,5 MeV	2 MeV	3 MeV	
SiO2/Si	1,24 + 29,5	1,24 + 46,5	1,25 + 90,2	
Fe	12,5	19,2	35,7	
Cu	12,3	18,65	34,4	
Ag	12,15	17,7	31,4	
Au	10,9	16,1	28,5	
Pb	18,5	27,5	49,1	
	Alpha			
	3 MeV	4 MeV	5 MeV	6 MeV
SiO2/Si	1,24 + 12,25	1,24 + 18,15	1,24 + 24,25	1,24 + 32,35
Fe	5,5	7,7	10,25	13,1
Cu	6,35	8,55	11	13,75
Ag	6,2	8,1	11,1	14,05
Au	6	7,9	10,05	12,4
Pb	8,8	11,9	15,4	19,25
	<sup>3</sup> He			
	2 MeV	3 MeV	4,5 MeV	6 MeV
SiO2/Si	1,24 + 8,3	1,24 + 13,7	1,24 + 24,3	1,24 + 36,7
Fe	3,75	5,85	9,9	14,85
Cu	4,4	6,5	10,45	15,15
Ag	4,25	6,5	10,65	15,65
Au	4,25	6,1	9,45	13,4
Pb	6,1	9,1	14,6	21,2

TABLE 1.7 – Parcours maximale des particules incidentes dans la matière.

traités par GupixWin. Ils sont organisés de la même manière que les tableaux des cibles minces. D'autre part, de manière également similaire aux expé-

riences des cibles minces, les graphiques des intensités et des rapports des intensités divisées par le bruit de fond en fonction de l'énergie des rayons X sont publiés aux figures 1.14 à 1.19. Dans ces graphiques, un troisième paramètre a été pris en compte. Il s'agit du parcours de la particule incidente, qui a été inséré dans la surface de chaque sphère à une échelle de 30% de la valeur réelle.

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ppm)	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Intensité théorique ( $\mu\text{C/ppm}$ )
H							
H	1,5*	Pb	L	10,55	1000000	0,15	28,4
H	1,5*		M	2,346	1000000	0,15	586,7
H	1,5*	Au	L	9,713	1000000	0,15	39,02
H	1,5*		M	2,123	1000000	0,15	678,2
H	1,5*	Ag	K	22,16	1000000	0,15	1,62
H	1,5*		L	2,984	1000000	0,15	860,1
H	1,5*	Cu	K	8,048	1000000	0,15	177,7
H	1,5*	Fe	K	6,404	1000000	0,15	394
H	1,5*	SiO2onSi	K	1,704	467400	0,15	7940
H	2	SiO2onSi	K	1,704	1620700	0,45	11341
H	2	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,45	1092
H	2	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,45	532,5
H	2	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,45	6,54
H	2		L	2,984	1,00E+06	0,45	1350
H	2	Au	L	9,713	1,00E+06	0,45	94,66
H	2		M	2,123	1,00E+06	0,45	920,6
H	2	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,45	71,65
H	2		M	2,346	1,00E+06	0,45	817,8
H	3	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,45	211,1
H	3		M	2,346	1,00E+06	0,45	1159
H	3	Au	L	9,713	1,00E+06	0,45	265,8
H	3		M	2,123	1,00E+06	0,45	1257
H	3	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,45	39,84
H	3		L	2,984	1,00E+06	0,45	2112
H	3	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,45	1979
H	3	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,45	3500
H	3	SiO2onSi	K	1,704	965000	0,45	14427
$^4\text{He}$							
$^4\text{He}$	3	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,3	8,66
$^4\text{He}$	3		M	2,346	1,00E+06	0,3	870,3
$^4\text{He}$	3	Au	L	9,713	1,00E+06	0,3	12,72
$^4\text{He}$	3		M	2,123	1,00E+06	0,3	1066
$^4\text{He}$	3	Au	L	9,713	1,00E+06	0,3	12,72
$^4\text{He}$	3		M	2,123	1,00E+06	0,3	1066
$^4\text{He}$	3	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,3	0,17
$^4\text{He}$	3		L	2,984	1,00E+06	0,3	644,4
$^4\text{He}$	3	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,3	27,18
$^4\text{He}$	3	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,3	66,06
$^4\text{He}$	3	SiO2onSi	K	1,704	705000	0,3	6210
$^4\text{He}$	4	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,3	29,09
$^4\text{He}$	4		M	2,346	1,00E+06	0,3	1372
$^4\text{He}$	4	Au	L	9,713	1,00E+06	0,3	41,01
$^4\text{He}$	4		M	2,123	1,00E+06	0,3	1649
$^4\text{He}$	4	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,3	0,78
$^4\text{He}$	4		L	2,984	1,00E+06	0,3	1405



Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,997	0,7871	4400	30	100	44,0	1302
0,971	0,7230	84800	170	3211	26,4	1372
0,997	0,7781	6400	50	278	23,0	1415
0,965	0,7079	103800	140	2178	47,7	1494
0,875	0,9413	300	10	11	27,0	1301
0,98	0,7464	120800	70	544	221,9	1280
0,998	0,7696	27500	60	400	68,8	1344
0,996	0,7676	61600	70	544	113,1	1364
0,974	0,6649	740000	180	3600	205,6	2053
0,974	0,6649	755200	170	3211	235,2	489
0,996	0,7676	101100	90	900	112,3	269
0,996	0,7676	53500	60	400	133,8	292
0,875	0,9413	700	30	100	7,0	308
0,98	0,7464	105700	170	3211	32,9	238
0,997	0,7781	9800	40	178	55,1	296
0,965	0,7079	65900	120	1600	41,2	233
0,997	0,7871	7600	40	178	42,7	302
0,971	0,7230	58500	120	1600	36,6	226
0,997	0,7871	22300	30	100	223,0	299
0,971	0,7230	89200	130	1878	47,5	244
0,997	0,7781	27100	40	178	152,4	292
0,965	0,7079	94200	190	4011	23,5	244
0,875	0,9413	4500	40	178	25,3	306
0,98	0,7464	163200	190	4011	40,7	235
0,996	0,7676	186600	80	711	262,4	274
0,996	0,7676	298800	100	1111	268,9	248
0,974	0,6649	932800	180	3600	259,1	475
0,997	0,7871	1000	30	100	10,0	487
0,971	0,7230	76600	70	544	140,7	418
0,997	0,7781	1500	20	44	33,8	523
0,965	0,7079	90200	150	2500	36,1	413
0,997	0,7781	1500	20	44	33,8	521
0,965	0,7079	91500	120	1600	57,2	419
0,875	0,9413	0	0	0		
0,98	0,7464	56500	130	1878	30,1	400
0,996	0,7676	2700	20	44	60,8	427
0,996	0,7676	6400	40	178	36,0	422
0,974	0,6649	344200	180	3600	95,6	610
0,997	0,7871	2900	20	44	65,3	422
0,971	0,7230	104500	160	2844	36,7	362
0,997	0,7781	4200	20	44	94,5	439
0,965	0,7079	131400	220	5378	24,4	389
0,875	0,9413	0	0	0		
0,98	0,7464	110600	160	2844	38,9	359

Particule	Energie (MeV)	Cible	Raies	Energie (keV)	Concentration élémentaire (ppm)	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Intensité théorique ( $\mu\text{C/ppm}$ )
$^4\text{He}$	4	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,3	104,5
$^4\text{He}$	4	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,3	249,9
$^4\text{He}$	4	SiO2onSi	K	1,704	576800	0,3	14340
$^4\text{He}$	6	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,3	76,95
$^4\text{He}$	6		M	2,346	1,00E+06	0,3	1990
$^4\text{He}$	6	Au	L	9,713	1,00E+06	0,3	99,87
$^4\text{He}$	6		M	2,123	1,00E+06	0,3	1985
$^4\text{He}$	6	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,3	4,25
$^4\text{He}$	6		L	2,984	1,00E+06	0,3	2988
$^4\text{He}$	6	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,3	318,3
$^4\text{He}$	6	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,3	1380
$^4\text{He}$	6	SiO2onSi	K	1,704	467400	0,3	33382
$^3\text{He}$							
$^3\text{He}$	3*	Pb	L	10,55	1000000	0,3	21,78
$^3\text{He}$	3*		M	2,346	1000000	0,3	1313
$^3\text{He}$	3*	Au	L	9,713	1000000	0,3	31,25
$^3\text{He}$	3*		M	2,123	1000000	0,3	1586
$^3\text{He}$	3*	Au	L	9,713	1000000	0,3	31,25
$^3\text{He}$	3*		M	2,123	1000000	0,3	1586
$^3\text{He}$	3*	Ag	K	22,16	1000000	0,3	0,53
$^3\text{He}$	3*		L	2,984	1000000	0,3	1254
$^3\text{He}$	3*	Cu	K	8,048	1000000	0,3	77,33
$^3\text{He}$	3*	Fe	K	6,404	1000000	0,3	186,8
$^3\text{He}$	3*	SiO2onSI	K	1,704	467400	0,3	11823
$^3\text{He}$	4,5*	Pb	L	10,55	1000000	0,3	103,1
$^3\text{He}$	4,5*		M	2,346	1000000	0,3	2341
$^3\text{He}$	4,5*	Pb	L	10,55	1000000	0,3	103,1
$^3\text{He}$	4,5*		M	2,346	1000000	0,3	2341
$^3\text{He}$	4,5*	Pb	L	10,55	1000000	0,3	103,1
$^3\text{He}$	4,5*		M	2,346	1000000	0,3	2341
$^3\text{He}$	4,5*	Au	L	9,713	1000000	0,3	140,3
$^3\text{He}$	4,5*		M	2,123	1000000	0,3	2733
$^3\text{He}$	4,5*	Ag	K	22,16	1000000	0,3	4,19
$^3\text{He}$	4,5*		L	2,984	1000000	0,3	3189
$^3\text{He}$	4,5*	Cu	K	8,048	1000000	0,3	472,6
$^3\text{He}$	4,5*	Fe	K	6,404	1000000	0,3	1079
$^3\text{He}$	4,5*	SiO2onSI	K	1,704	467400	0,3	29784
$^3\text{He}$	6	Pb	L	10,55	1,00E+06	0,3	263,7
$^3\text{He}$	6		M	2,346	1,00E+06	0,3	3266
$^3\text{He}$	6	Au	L	9,713	1,00E+06	0,3	346,9
$^3\text{He}$	6		M	2,123	1,00E+06	0,3	3707
$^3\text{He}$	6	Ag	K	22,16	1,00E+06	0,3	16,94
$^3\text{He}$	6		L	2,984	1,00E+06	0,3	5180
$^3\text{He}$	6	Cu	K	8,048	1,00E+06	0,3	1524
$^3\text{He}$	6	Fe	K	6,404	1,00E+06	0,3	3248
$^3\text{He}$	6	SiO2onSi	K	1,704	467400	0,3	45045

Efficacité détecteur	Transmission filtre	Aire	LOD	Bruit de fond ( $LOD^2/9$ )	Intensité / Bruit de fond	Facteur $H$ calculé
0,996	0,7676	8900	360	14400	0,6	372
0,996	0,7676	21500	10	11	1935,2	376
0,974	0,6649	618600	90	900	687,3	475
0,997	0,7871	11900	50	278	42,8	659
0,971	0,7230	167700	230	5878	28,5	400
0,997	0,7781	16400	50	278	59,0	705
0,965	0,7079	207400	260	7511	27,6	510
0,875	0,9413	700	10	11	63,0	713
0,98	0,7464	229100	250	6944	33,0	349
0,996	0,7676	49300	90	900	54,8	675
0,996	0,7676	109700	110	1344	81,6	347
0,974	0,6649	1024300	190	4011	255,4	338
0,997	0,7871	8300	30	100	83,0	1626
0,971	0,7230	162000	160	2844	57,0	586
0,997	0,7781	11900	40	178	66,9	1633
0,965	0,7079	200100	240	6400	31,3	616
0,997	0,7781	12300	30	100	123,0	1696
0,965	0,7079	210800	240	6400	32,9	648
0,875	0,9413	400	10	11	36,0	3097
0,98	0,7464	241600	210	4900	49,3	878
0,998	0,7696	33600	60	400	84,0	1886
0,996	0,7676	79600	70	544	146,2	1859
0,974	0,6649	1534100	90	900	1704,6	1429
0,997	0,7871	1800	30	100	18,0	76
0,971	0,7230	107200	170	3211	33,4	217
0,997	0,7871	2100	20	44	47,3	85
0,971	0,7230	123400	150	2500	49,4	250
0,997	0,7871	2300	30	100	23,0	96
0,971	0,7230	136800	90	900	152,0	277
0,997	0,7781	3900	40	178	21,9	119
0,965	0,7079	159300	220	5378	29,6	284
0,875	0,9413	0	0	0		
0,98	0,7464	82800	140	2178	38,0	118
0,998	0,7696	6400	30	100	64,0	59
0,996	0,7676	16600	30	100	166,0	67
0,974	0,6649	660700	130	1878	351,9	244
0,997	0,7871	21300	40	178	119,8	342
0,971	0,7230	183900	220	5378	34,2	267
0,997	0,7781	28900	30	100	289,0	358
0,965	0,7079	236300	270	8100	29,2	311
0,875	0,9413	1800	20	44	40,5	427
0,98	0,7464	291100	310	10678	27,3	256
0,996	0,7676	106300	80	711	149,5	304
0,996	0,7676	214200	170	3211	66,7	288
0,974	0,6649	1293400	290	9344	138,4	316

TABLE 1.8 – Tableaux récapitulatifs des résultats des cibles épaisses.

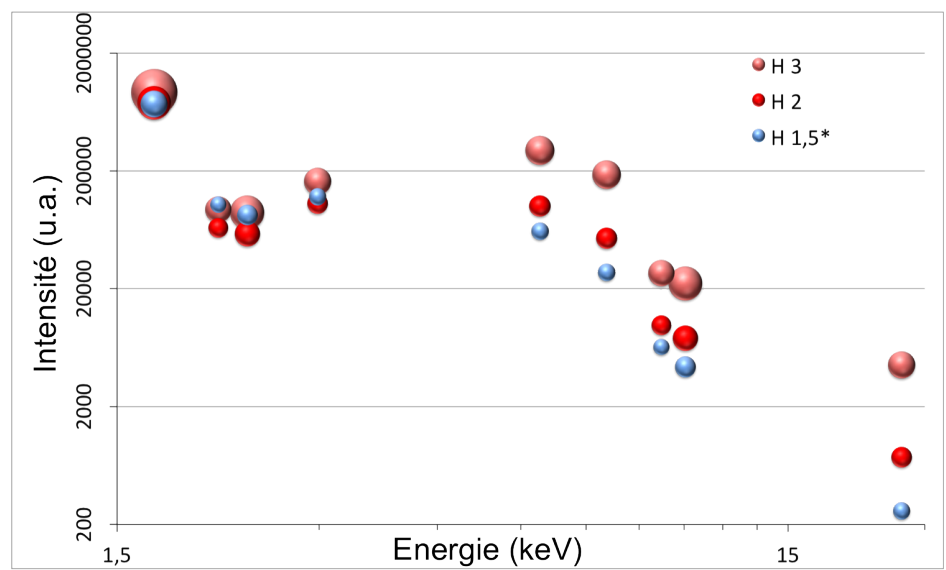


FIGURE 1.14 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons.

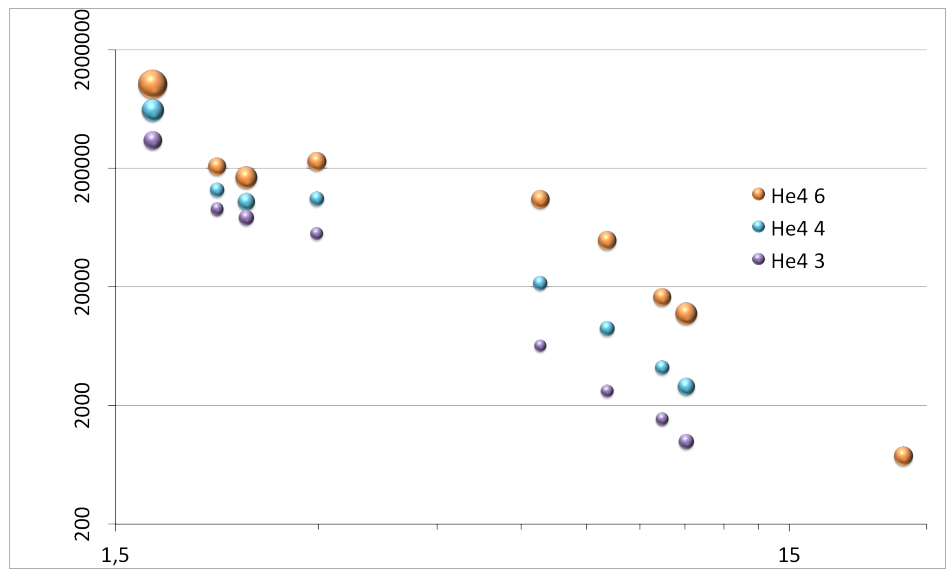


FIGURE 1.15 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules  $\alpha$ .

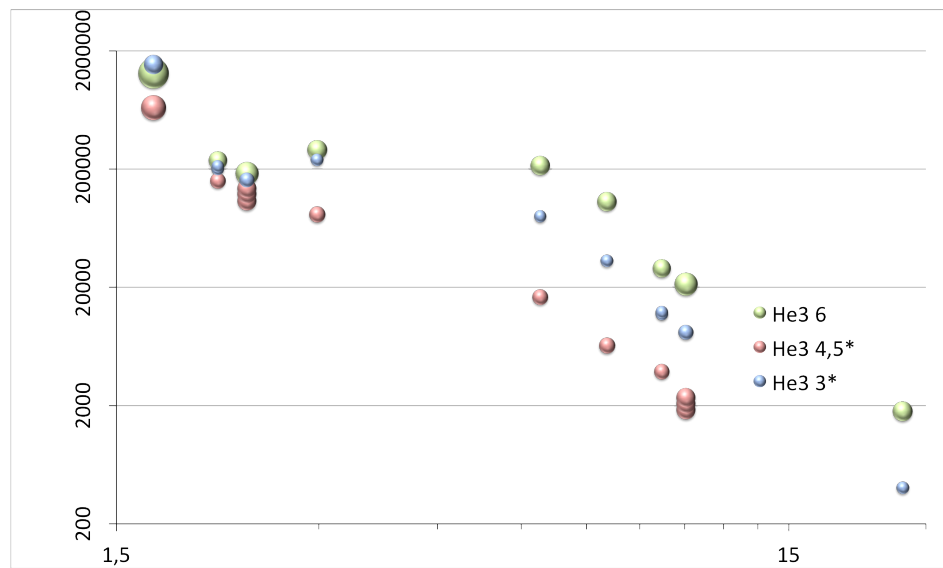


FIGURE 1.16 – Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les  $^3He$ .

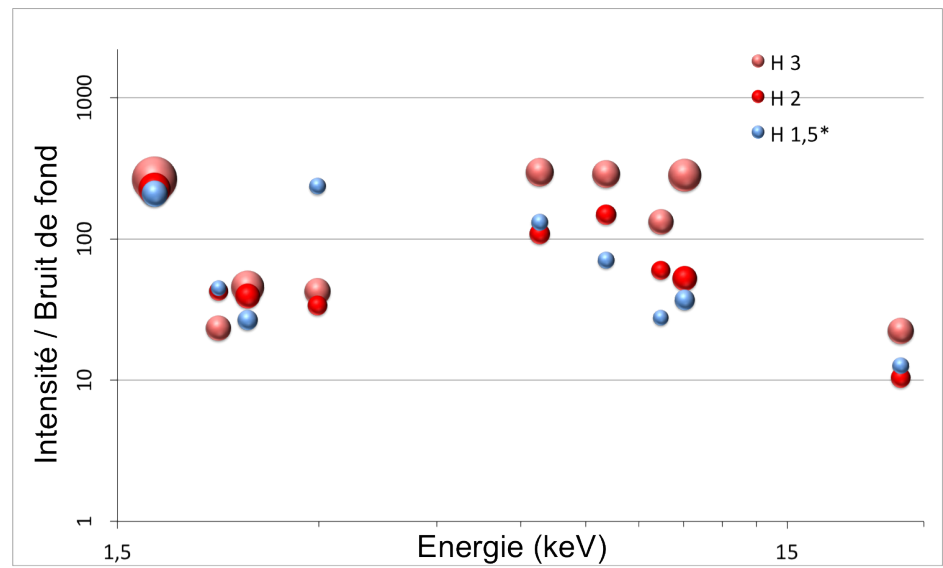


FIGURE 1.17 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons.

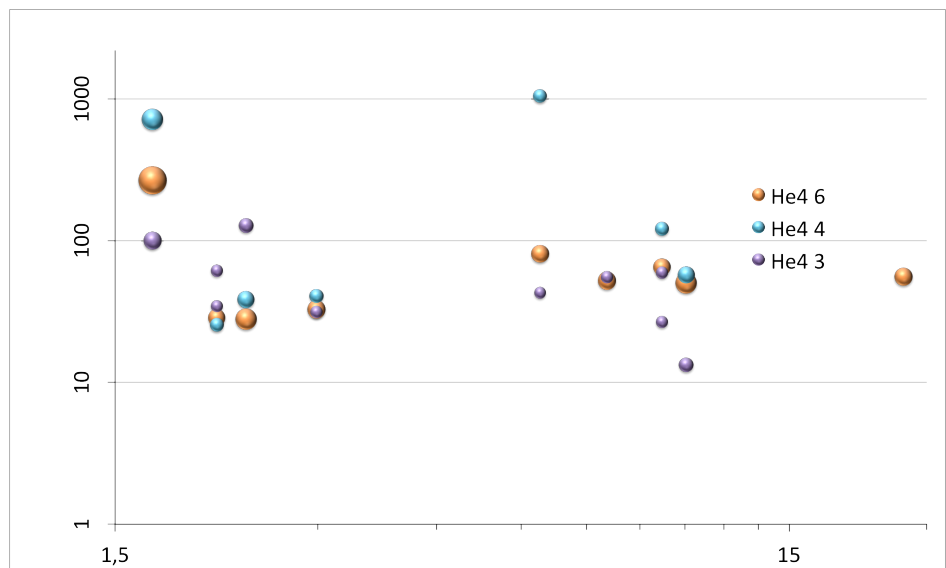


FIGURE 1.18 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules  $\alpha$ .

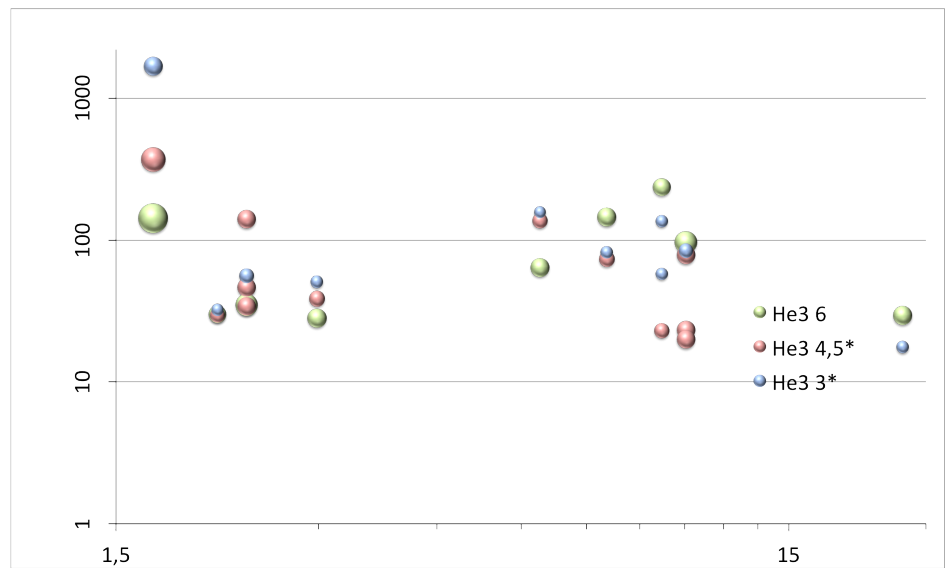


FIGURE 1.19 – Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les  $^3\text{He}$ .

### 1.3.1 Interprétations

#### Intensité

Dans le cas des protons, le graphique 1.14 met en évidence l'avantage du faisceau de plus haute énergie de 3 MeV pour l'ensemble de la gamme d'énergie des rayons X, et ce surtout aux hautes énergies. Les sections efficaces de production de rayons X augmentant avec l'énergie des particules incidentes, ces résultats sont logiques. Le faisceau de 3 MeV pénètre plus en profondeur, ce qui augmente l'intensité des rayons X. Ceux de haute énergie sont moins atténués lors de leur parcours entre leur point d'émission et le détecteur et de ce fait, l'épaisseur réellement sondée est plus grande que dans le cas des rayons X de faibles énergies qui sont plus fortement atténués. La tendance rend bien compte de cet effet.

Le cas des particules  $\alpha$  est semblable au cas des protons comme le montre le graphique 1.15. Le faisceau le plus énergétique, de 6 MeV, donne les meilleurs résultats avec une tendance plus prononcée aux hautes énergies.

Le graphique 1.16 met en exergue un comportement similaire pour les  ${}^3\text{He}$ . Le faisceau de 6 MeV obtient également les meilleurs résultats avec une tendance plus prononcée aux hautes énergies. Par contre, d'une manière étonnante, le faisceau de 3 MeV montre une plus grande intensité que le faisceau de 4,5 MeV aux hautes énergies.

La comparaison des couples énergie/particule est réalisée :

- Dans le cas d'un rapport énergie/masse constant pour les différentes particules.

Les graphiques mettent en évidence l'avantage des faisceaux d'hélium, de 6 MeV  $\alpha$  pour les rayons X de faibles énergies. Tandis que pour ces énergies, le faisceau de protons de 1,5 MeV a les plus faibles intensités, et que le faisceau d' ${}^3\text{He}$  possède des intensités légèrement supérieures au cas des protons. Cette tendance tend à s'annuler à plus haute énergie, où le faisceau de 1,5 MeV proton obtient les intensités les plus élevées, suivi du faisceau de particules  $\alpha$  et finalement du faisceau d' ${}^3\text{He}$ . Il est à noter que pour les trois faisceaux, les parcours dans la matière et la quantité de matière sondée sont les mêmes.

- Et dans le cas de l'ensemble des différentes particules.

Pour les rayons de faibles énergies, le faisceau de 6 MeV  $^3\text{He}$  montre les intensités les plus importantes par rapport aux faisceaux de 6 MeV  $\alpha$ . Le faisceau de protons de 3 MeV obtient les moins bons résultats, même s'il parcourt le plus de matière. A plus haute énergie, la tendance est modifiée. Le faisceau de particules  $\alpha$  montre les moins bons résultats, suivi du faisceau d' $^3\text{He}$ . L'intensité maximale est observée pour le faisceau de protons. L'atténuation des rayons X de haute énergie émis plus en profondeur de l'échantillon étant moindre que pour les rayons X de faible énergie.

### Intensité/bruit de fond

La discussion du rapport entre l'intensité et le bruit de fond est encore plus importante dans le cas des cibles épaisses. En effet, une grande partie du bruit de fond provient de la décélération des particules incidentes et des électrons secondaires. Ces phénomènes ont été, pour rappel, discutés dans la partie dédiée aux méthodes IBA.

Dans le cas des protons, le graphique 1.17 montre deux tendances. Aux faibles énergies, de part les sections efficaces de production de rayons X importantes, la statistique importante minimise l'influence du bruit de fond moins importante. Les différents faisceaux montrent des rapports relativement similaires avec cependant un léger avantage pour le faisceau de 3 MeV, qui de plus est le plus pénétrant. Par contre, à plus haute énergie, le faisceau de 3 MeV s'impose. En plus d'avoir une meilleure intensité, un parcours plus grand dans la matière, il possède également le meilleur rapport entre l'intensité et le bruit de fond. Ce faisceau est donc sans conteste le plus adéquat à extraire.

Dans le cas des particules  $\alpha$ , le graphique 1.18 met en exergue l'avantage du faisceau de 4 MeV pour l'ensemble de la gamme d'énergie. Cependant, il est moins pénétrant que le faisceau de 6 MeV, qui a de surcroît de meilleures intensités.

Le graphique 1.19 montre l'avantage du faisceau de 3 MeV, qui malgré des intensités et des parcours plus faible dans la matière, obtient de meilleurs rapports pour les éléments légers. Le bruit de fond important à plus haute énergie est causé par les nombreuses réactions nucléaires sur les éléments



légers avec les  ${}^3\text{He}$  très réactifs. Un compromis doit donc être fait pour ces éléments. Pour les rayons X de plus haute énergie, le faisceau de 6 MeV tient le haut du pavé sur tous les fronts : l'intensité, le rapport de l'intensité sur le bruit de fond et le parcours dans la matière.

La comparaison des faisceaux ayant le même rapport énergie/masse ne montre aucune tendance. Cependant, pour l'ensemble des couples, deux tendances se distinguent :

- pour les rayons X de faible énergie, les faisceaux de particules  $\alpha$  de 4 MeV et d' ${}^3\text{He}$  de 3 MeV sont mieux adaptés que les faisceaux de protons. Le faisceau de 4 MeV  $\alpha$  a cependant une pénétration bien inférieure aux protons de 3 MeV ;
- pour les rayons X de plus haute énergie, le faisceau de protons de 3 MeV montre les meilleurs résultats pour tous les paramètres.  
Les résultats obtenus sur l'argent à partir de la raie K (22,16 keV), proposant une troisième tendance, ont une statistique très faible et donc une erreur statistique importante. Ce seul point n'est pas suffisant à la définition d'un nouveau comportement.

## Conclusion

En conclusion, les résultats obtenus sur les cibles épaisses corroborent les résultats des cibles minces. Ils montrent bien l'intérêt de choisir et d'adapter le couple énergie/particule du faisceau aux éléments constitutifs des cibles minces. Pour les éléments légers, le faisceau de particules  $\alpha$  de 6 MeV sera préféré. L'intensité des rayons X est suffisamment importante, le rapport intensité sur bruit est le meilleur et le parcours dans la matière est le plus important pour les faisceaux de particules  $\alpha$  bien qu'il soit nettement inférieur à celui du faisceau de 3 MeV proton. Pour les éléments plus lourds, le faisceau de protons de 3 MeV est la meilleure solution et a le meilleur pouvoir de pénétration.

## 1.4 Conclusion

Les expériences réalisées à l'accélérateur AGLAE du C2RMF de Paris sur des cibles minces et des cibles épaisses ont montré deux grandes tendances au travers de l'étude des trois paramètres que sont l'intensité des rayons X détectés afin d'avoir la meilleure statistique et donc la meilleure précision, le rapport entre l'intensité et le bruit de fond afin d'obtenir la meilleure limite de détection et le pouvoir de pénétration des particules incidentes afin d'augmenter la profondeur de l'échantillon analysé et donc sa représentation.

Le faisceau de particules  $\alpha$  de 6 MeV est le plus adapté pour l'analyse des éléments légers. Les sections efficaces de production de rayons X et donc les intensités sont les meilleures et le rapport intensité sur bruit est meilleur pour les faisceaux de protons avec un bruit de fond moindre. Le seul point négatif est le faible pouvoir de pénétration des particules  $\alpha$  dans la matière par rapport aux protons. L'énergie incidente du faisceau est pourtant maximisée dans les possibilités de l'accélérateur tandem parisien.

Le faisceau de protons de 3 MeV est, quant à lui, le mieux approprié à l'analyse des éléments lourds. Les trois paramètres  $y$  sont maximisés.

Le faible pouvoir de pénétration des particules  $\alpha$  peut être compensé par l'augmentation de l'énergie de manière à sonder une profondeur de l'échantillon comparable à celle en proton de 2 à 3 MeV. De ce fait, l'intensité devrait être maximisée (les sections efficaces de productions sont plus importantes), le bruit de fond devrait être minimisé par l'utilisation de particules  $\alpha$  et le parcours dans la matière serait semblable.

## Chapitre 2

# La capacité analytique du cyclotron de Liège

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Analyses de cibles minces . . . . .</b>	<b>249</b>
<b>2.2</b>	<b>Analyses de cibles épaisses . . . . .</b>	<b>260</b>
2.2.1	Cibles épaisses élémentaires . . . . .	260
2.2.2	Cibles minces multi-élémentaires de référence. . .	266
<b>2.3</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>277</b>

---

Les récents développements effectués en 2007 et en 2008 permettent désormais de produire des faisceaux de haute énergie. Une étude doit démontrer la possibilité de les employer avec la méthode PIXE. De ce fait, en parallèle à la construction d'un nouveau dispositif dédié aux mesures de sections efficaces non-Rutherford et de production de rayons X, des expériences préliminaires à haute énergie ont dû être réalisées. En effet, si les faisceaux de haute énergie sont bien appropriés pour la caractérisation de différents objets industriels ou du patrimoine culturel (métaux corrodés, couches de surface, revêtements, etc...), une optimisation de leur utilisation doit être réalisée pour obtenir une performance adéquate, comme lors de chaque amélioration de technique.

### 2.1 Analyses de cibles minces

Les expériences ont été réalisées à l'air libre sur la zone de travail de la ligne de transport direct du cyclotron de l'IPNAS avec des faisceaux de

particules  $\alpha$  de haute énergie (de 6 à 12 MeV) et de protons de 3 MeV sur des échantillons minces [67]. Le porte-échantillon permet le positionnement de toutes les références dans une même géométrie de détection. Les rayons X émis par l'échantillon ont été collectés par le détecteur Si(Li) monté à  $40^\circ$  par rapport à la normale de la surface des échantillons et couplé au processeur de pulse Titan de la société “e2V scientific instruments”. Le flux d'hélium a été introduit afin d'éviter une dispersion énergétique et spatiale du faisceau, l'absorption des rayons X émis par la cible par l'air compris entre l'échantillon et le détecteur.

Les échantillons fabriqués par la société “Micromatter” analysés sont représentatifs de toute la gamme d'éléments chimiques qui peuvent être trouvés dans les domaines du patrimoine culturel et industriel, allant du sodium au bismuth. Le tableau 2.1 reprend l'ensemble des cibles minces irradiées et leurs concentrations élémentaires.

Quatre faisceaux ont été comparés :

- 3 MeV proton ;
- 6 MeV  $\alpha$  ;
- 9 MeV  $\alpha$  ;
- 12 MeV  $\alpha$ .

Les tableaux 2.2 à 2.5 reprennent les résultats obtenus lors des différents dépouillements avec le logiciel “GupixWin”. Outre les caractéristiques des cibles minces, ils reprennent la dose de particules reçue par l'échantillon afin de normaliser les différentes expériences, l'aire des pics ensuite comparée au bruit de fond. (Le bruit de fond a été calculé grâce à la relation, trouvée dans la littérature du logiciel, entre la limite de détection calculée par le programme et le bruit de fond.)

Elément	Epaisseur ( $\mu g/cm^2$ )	Elément	Epaisseur ( $\mu g/cm^2$ )
NaCl	50,2	Cu	52,1
Mg	45,1	ZnTe	52,1
Al	42,8	GaP	46,1
SiO	51,2	CdSe	58,9
GaP*	40,6	CsBr	46,3
GaAs*	57,7	RbI*	46,5
CuS <sub>x</sub>	40,9/17,1	Ag*	46,6
KCl	49,8	AgHg*	13,7/28,1
TlCl	46,9	In	49,5
CaF	44,8	Sn*	44,9
ScF <sub>3</sub>	49,6	SrF <sub>2</sub>	49,9
Ti	44,7	Sb*	47,5
V	48,2	BaF <sub>2</sub>	45,5
Cr	44,4	Pt	38,6
Mn*	50,1	Au	47,5
Fe*	47,5	Pb*	55,4
Co	50,1	Bi	46,6
Ni*	39		

TABLE 2.1 – Cibles minces “Micromatter”.

Le graphique de la figure 2.1 compare les intensités normalisées des pics pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV en fonction de l'énergie des rayons X caractéristiques. Il est directement observé une augmentation de l'intensité des pics avec l'énergie du faisceau pour tous les éléments. En effet, les sections efficaces de production de rayons X et d'ionisation augmentent toujours avec l'énergie du faisceau dans cette gamme d'énergie.

Ce résultat expérimental est en bon accord avec les différents modèles théoriques. Cependant, l'énergie du faisceau ne peut pas être augmentée indéfiniment. Une limite doit être définie. En effet, si l'intensité des pics augmente avec l'énergie, le bruit de fond augmente également. Donc, comme le montre le graphique de la figure 2.2, la limite de détection et le rapport signal sur bruit sont des facteurs limitants. L'intensité du pic divisée par la somme (pic + bruit de fond) a été représentée de manière à avoir un rapport de 1 dans un cas parfait, sans bruit de fond.

Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>Proton</b>	<b>3 MeV</b>					
Zn	1,012	17,65	100000	100	30	0,42
Na	1,041	19,74	100000	250	40	0,59
Ga(As)	1,1	27,88	100000	80	50	0,26
Ga(P)	1,1	28,1	100000	220	50	0,47
Mg	1,254	45,1	100000	2030	50	0,90
As	1,282	29,88	100000	680	50	0,75
Se	1,379	24,3	100000	670	40	0,77
Br	1,481	17,3	100000	340	40	0,71
Al	1,487	42,8	100000	3870	50	0,93
Rb	1,694	18,7	100000	490	30	0,81
Si(O)	1,74	32,58	100000	3780	40	0,96
Sr	1,806	34,8	100000	1690	40	0,91
P	2,01	12,48	100000	2610	30	0,95
Pt	2,049	38,6	100000	930	20	0,95
Au	2,12	47,5	90000	2250	40	0,92
Hg	2,194	28,1	90000	640	30	0,84
Tl	2,268	39,9	90000	1640	20	0,98
CuSx	2,308	40,9	100000	1720	30	0,95
Pb	2,345	55,4	90000	2190	40	0,91
Bi	2,42	46,6	90000	2110	20	0,98
Cl	2,622	30,45	100000	2680	30	0,97
Cl(K)	2,622	23,6	100000	2830	40	0,95
Ag(Hg)	2,984	13,7	90000	1100	20	0,97
Ag	2,984	46,6	100000	1780	30	0,95
Cd	3,134	34,6	100000	700	50	0,73
In	3,287	49,5	100000	1350	20	0,98
KCl	3,314	26,5	100000	2230	20	0,98
Sn	3,444	44,9	100000	600	30	0,87
Sb	3,605	47,5	100000	820	20	0,92
CaF	3,692	30,39	100000	1410	20	0,97
Te	3,769	34,44	100000	700	10	0,97
I	3,938	27,7	100000	300	20	0,90
ScF3	4,091	10,47	100000	850	20	0,95
Cs	4,286	28,9	100000	310	10	0,98
Ba	4,466	35,64	100000	330	20	0,92
Ti	4,511	44,7	100000	1300	30	0,94
V	4,952	48,2	100000	1220	20	0,97
Cr	5,415	44,4	100000	870	20	0,97
Mn	5,899	50,1	100000	830	30	0,92
Fe	6,405	47,5	100000	700	20	0,96
Co	6,93	50,1	100000	570	20	0,91
Ni	7,478	39	100000	390	20	0,94
Cu	8,048	52,1	100000	320	20	0,91
CuSx	8,048	40,9	100000	320	10	0,96
Zn	8,639	17,65	100000	80	10	0,76
Ga(As)	9,252	27,81	100000	50	10	0,87
Ga	9,252	28,1	100000	60	10	0,83
Pt	9,442	38,6	100000	50	0	0,98
Au	9,713	47,5	100000	120	10	0,92
Hg	9,989	28,1	100000	/	/	0,00
Tl	10,268	39,9	100000	80	10	0,80
Pb	10,551	55,4	100000	90	10	0,92
As	10,544	29,88	100000	80	10	0,91
Bi	10,839	46,6	100000	90	10	0,85
Se	11,222	24,3	100000	40	10	0,82
Br	11,924	17,3	100000	10	10	0,75
Rb	13,395	18,7	100000	10	10	0,65
Sr	14,165	34,8	100000	20	10	0,81

TABLE 2.2 – Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de protons de 3 MeV.

Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>Alpha</b>	<b>6 MeV</b>					
Zn	1,012	17,65	6000	2790	70	0,85
Na	1,041	19,74	6000	420	50	0,62
Ga(As)	1,1	27,88	6000	1830	140	0,47
Ga(P)	1,1	28,1	6000	3180	80	0,82
Mg	1,254	45,1	6000	4820	60	0,92
As	1,282	29,88	6000	7080	90	0,88
Se	1,379	24,3	6000	5030	70	0,90
Br	1,481	17,3	6000	2530	40	0,93
Al	1,487	42,8	6000	6390	40	0,98
Rb	1,694	18,7	6000	1280	40	0,87
Si(O)	1,74	32,58	6000	12390	70	0,96
Sr	1,806	34,8	6000	5530	40	0,96
P	2,01	12,48	6000	6860	30	0,98
Pt	2,049	38,6	6000	3090	40	0,94
Au	2,12	47,5	6000	3640	10	1,00
Hg	2,194	28,1	6000	860	30	0,91
Tl	2,268	39,9	6000	2270	30	0,96
CuSx	2,308	40,9	6000	3360	30	0,97
Pb	2,345	55,4	6000	3180	30	0,97
Bi	2,42	46,6	6000	2520	30	0,96
Cl	2,622	30,45	6000	3660	40	0,95
Cl(K)	2,622	23,6	6000	4000	40	0,96
Ag(Hg)	2,984	13,7	6000	910	10	0,98
Ag	2,984	46,6	6000	2640	20	0,98
Cd	3,134	34,6	6000	1320	30	0,93
In	3,287	49,5	6000	1680	30	0,93
KCl	3,314	26,5	6000	2470	30	0,95
Sn	3,444	44,9	6000	910	30	0,93
Sb	3,605	47,5	6000	1320	20	0,98
CaF	3,692	30,39	6000	1640	20	0,98
Te	3,769	34,44	6000	880	10	0,99
I	3,938	27,7	6000	390	10	0,94
ScF3	4,091	10,47	6000	920	20	0,94
Cs	4,286	28,9	6000	420	10	0,95
Ba	4,466	35,64	6000	440	20	0,93
Ti	4,511	44,7	6000	1210	20	0,98
V	4,952	48,2	6000	930	20	0,96
Cr	5,415	44,4	6000	710	20	0,93
Mn	5,899	50,1	6000	580	10	0,97
Fe	6,405	47,5	6000	410	20	0,88
Co	6,93	50,1	6000	290	10	0,99
Ni	7,478	39	6000	230	10	0,90
Cu	8,048	52,1	6000	200	10	0,96
CuSx	8,048	40,9	6000	140	10	0,86
Zn	8,639	17,65	6000	60	10	0,78
Ga(As)	9,252	27,81	6000	30	10	0,68
Ga	9,252	28,1	6000	40	10	0,69
Pt	9,442	38,6	6000	40	10	0,70
Au	9,713	47,5	6000	50	10	0,77
Hg	9,989	28,1	6000	0	0	0,71
Tl	10,268	39,9	6000	20	10	0,68
Pb	10,551	55,4	6000	40	10	0,81
As	10,544	29,88	6000	50	10	0,71
Bi	10,839	46,6	6000	20	10	0,63
Se	11,222	24,3	6000	20	10	0,64
Br	11,924	17,3	6000	10	10	0,55
Rb	13,395	18,7	6000	10	10	0,46
Sr	14,165	34,8	6000	30	10	0,78

TABLE 2.3 – Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules  $\alpha$  de 6 MeV.

Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>Alpha</b>	<b>9 MeV</b>					
Zn	1,012	17,65	6000	3470	80	0,83
Na	1,041	19,74	6000	10430	80	0,94
Ga(As)	1,1	27,88	6000	3080	140	0,59
Ga(P)	1,1	28,1	6000	4150	90	0,83
Mg	1,254	45,1	6000	29340	60	0,99
As	1,282	29,88	6000	9950	90	0,92
Se	1,379	24,3	6000	2200	70	0,80
Br	1,481	17,3	6000	4170	70	0,90
Al	1,487	42,8	6000	27800	60	0,99
Rb	1,694	18,7	6000	3330	60	0,91
Si(O)	1,74	32,58	6000	17610	80	0,96
Sr	1,806	34,8	6000	10390	60	0,96
P	2,01	12,48	6000	10600	40	0,98
Pt	2,049	38,6	6000	5350	60	0,93
Au	2,12	47,5	6000	5830	60	0,94
Hg	2,194	28,1	6000	1660	50	0,88
Tl	2,268	39,9	6000	4090	50	0,93
CuSx	2,308	40,9	6000	6040	30	0,98
Pb	2,345	55,4	6000	5420	40	0,97
Bi	2,42	46,6	6000	4510	50	0,95
Cl	2,622	30,45	6000	9330	50	0,97
Cl(K)	2,622	23,6	6000	6710	60	0,95
Ag(Hg)	2,984	13,7	6000	1650	40	0,90
Ag	2,984	46,6	6000	4530	40	0,96
Cd	3,134	34,6	6000	1620	70	0,73
In	3,287	49,5	6000	4490	30	0,98
KCl	3,314	26,5	6000	4270	20	0,99
Sn	3,444	44,9	6000	3580	20	0,99
Sb	3,605	47,5	6000	2930	20	0,98
CaF	3,692	30,39	6000	2710	10	0,99
Te	3,769	34,44	6000	1510	30	0,92
I	3,938	27,7	6000	950	20	0,97
ScF3	4,091	10,47	6000	2040	30	0,95
Cs	4,286	28,9	6000	1010	10	0,98
Ba	4,466	35,64	6000	1170	20	0,96
Ti	4,511	44,7	6000	2760	30	0,97
V	4,952	48,2	6000	2290	20	0,97
Cr	5,415	44,4	6000	1840	20	0,97
Mn	5,899	50,1	6000	1520	10	0,98
Fe	6,405	47,5	6000	1140	10	0,98
Co	6,93	50,1	6000	900	20	0,95
Ni	7,478	39	6000	650	20	0,92
Cu	8,048	52,1	6000	570	20	0,95
CuSx	8,048	40,9	6000	460	20	0,91
Zn	8,639	17,65	6000	150	10	0,96
Ga(As)	9,252	27,81	6000	70	10	0,87
Ga	9,252	28,1	6000	80	10	0,86
Pt	9,442	38,6	6000	110	10	0,92
Au	9,713	47,5	6000	130	10	0,96
Hg	9,989	28,1	6000	30	10	0,77
Tl	10,268	39,9	6000	70	10	0,88
Pb	10,551	55,4	6000	110	10	0,88
As	10,544	29,88	6000	130	10	0,98
Bi	10,839	46,6	6000	60	10	0,82
Se	11,222	24,3	6000	20	10	0,59
Br	11,924	17,3	6000	40	10	0,73
Rb	13,395	18,7	6000	30	10	0,88
Sr	14,165	34,8	6000	50	10	0,73

TABLE 2.4 – Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules  $\alpha$  de 9 MeV.



Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>Alpha</b>	<b>12 MeV</b>					
Zn	1,012	17,65	6000	4910	80	0,87
Na	1,041	19,74	6000	11830	90	0,94
Ga(As)	1,1	27,88	6000	4570	150	0,65
Ga(P)	1,1	28,1	6000	5420	90	0,86
Mg	1,254	45,1	6000	33710	100	0,97
As	1,282	29,88	6000	14740	100	0,94
Se	1,379	24,3	6000	10350	110	0,88
Br	1,481	17,3	6000	5090	90	0,85
Al	1,487	42,8	6000	34020	80	0,98
Rb	1,694	18,7	6000	5340	90	0,86
Si(O)	1,74	32,58	6000	23780	60	0,98
Sr	1,806	34,8	6000	12810	60	0,97
P	2,01	12,48	6000	16210	80	0,96
Pt	2,049	38,6	6000	6690	80	0,91
Au	2,12	47,5	6000	8730	90	0,92
Hg	2,194	28,1	6000	2150	60	0,86
Tl	2,268	39,9	6000	5720	40	0,97
CuSx	2,308	40,9	6000	10030	60	0,96
Pb	2,345	55,4	6000	7820	50	0,97
Bi	2,42	46,6	6000	6030	60	0,93
Cl	2,622	30,45	6000	12680	60	0,97
Cl(K)	2,622	23,6	6000	10160	60	0,96
Ag(Hg)	2,984	13,7	6000	2440	60	0,87
Ag	2,984	46,6	6000	8980	70	0,94
Cd	3,134	34,6	6000	3880	100	0,77
In	3,287	49,5	6000	5970	60	0,94
KCl	3,314	26,5	6000	7250	50	0,96
Sn	3,444	44,9	6000	4850	60	0,93
Sb	3,605	47,5	6000	4820	50	0,94
CaF	3,692	30,39	6000	5100	50	0,94
Te	3,769	34,44	6000	2980	30	0,96
I	3,938	27,7	6000	2000	30	0,96
ScF3	4,091	10,47	6000	4230	30	0,97
Cs	4,286	28,9	6000	1670	30	0,95
Ba	4,466	35,64	6000	1860	30	0,96
Ti	4,511	44,7	6000	5910	30	0,98
V	4,952	48,2	6000	4850	30	0,98
Cr	5,415	44,4	6000	3840	30	0,97
Mn	5,899	50,1	6000	3350	20	0,98
Fe	6,405	47,5	6000	2670	30	0,97
Co	6,93	50,1	6000	2220	30	0,97
Ni	7,478	39	6000	1580	20	0,96
Cu	8,048	52,1	6000	1500	20	0,96
CuSx	8,048	40,9	6000	1100	20	0,94
Zn	8,639	17,65	6000	310	20	0,84
Ga(As)	9,252	27,81	6000	200	20	0,78
Ga	9,252	28,1	6000	190	10	0,89
Pt	9,442	38,6	6000	220	10	0,94
Au	9,713	47,5	6000	270	20	0,86
Hg	9,989	28,1	6000	80	10	0,75
Tl	10,268	39,9	6000	160	20	0,86
Pb	10,551	55,4	6000	220	10	0,92
As	10,544	29,88	6000	330	10	0,95
Bi	10,839	46,6	6000	120	10	0,85
Se	11,222	24,3	6000	40	30	0,31
Br	11,924	17,3	6000	90	10	0,80
Rb	13,395	18,7	6000	60	20	0,65
Sr	14,165	34,8	6000	90	20	0,64

TABLE 2.5 – Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules  $\alpha$  de 12 MeV.

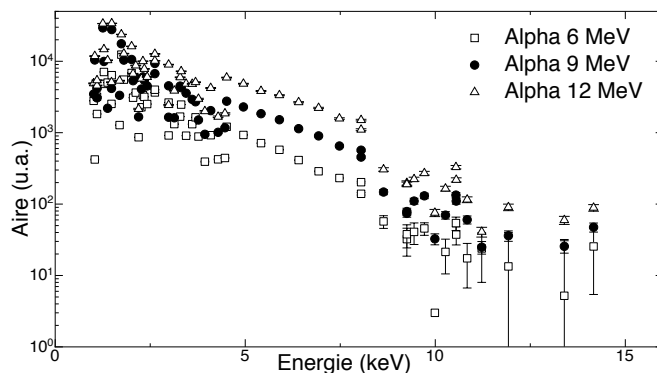


FIGURE 2.1 – Comparaison des intensités normalisées pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Le rapport calculé est très proche de 1 pour les éléments légers ( $13 < Z < 26$ ) allant de l'aluminium au fer avec les trois faisceaux différents - 6, 9, et 12 MeV. Les éléments de moindre énergie subissent une atténuation importante et obtiennent de moins bons résultats. Pour les éléments intermédiaires ( $27 < Z < 33$ ), le rapport est compris entre 0,6 et 0,95. Si le faisceau de 6 MeV montre des résultats inférieurs, il est impossible de définir la meilleure énergie entre les deux autres. Il est donc clair qu'il n'y a aucun avantage à augmenter trop l'énergie du faisceau. Par ailleurs, pour les éléments plus lourds ( $Z > 34$ ) le rapport continue à diminuer et le faisceau de 12 MeV donne sans conteste les meilleurs résultats si l'on tient compte de son intensité importante. L'énergie du faisceau devra donc être adaptée en fonction des éléments présents dans l'échantillon pour avoir la meilleure analyse de l'objet industriel ou du patrimoine culturel.

La deuxième série d'expériences a consisté à comparer entre eux les faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie et les faisceaux de protons.

La comparaison des intensités des pics des rayons X n'a pas été envisagée ici car les expériences ont été réalisées à des dates distinctes. Il existe malheureusement une probabilité d'avoir analysé les échantillons dans deux géométries légèrement différentes. De plus le contrôle de la dose n'étant pas optimal, des erreurs importantes sont donc envisageables. Cependant la littérature nous indique que le principal facteur d'interaction menant à la production de rayons X est le rapport des vitesses entre le projectile et les

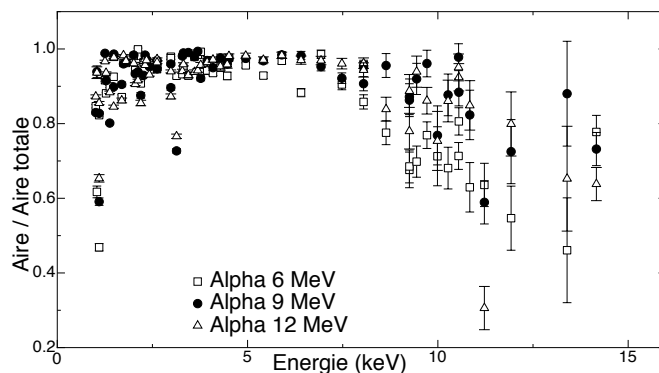


FIGURE 2.2 – Comparaison des rapports des intensités sur l’aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

électrons liés de la cible. De ce fait, les intensités des pics seront similaires pour les deux faisceaux. Dans la pratique, une légère augmentation de l’intensité pour les particules  $\alpha$  de 12 MeV a été observée.

Toutefois, comme il a été dit précédemment, le rapport signal sur bruit est davantage représentatif. Le graphique 2.3 présente la comparaison des rapports des intensités sur l’aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 12 MeV et de protons de 3 MeV.

Un double comportement a également été observé : Pour les éléments légers ( $1 < Z < 25$ ), le rapport (et donc la limite de détection) est meilleure avec le faisceau de particules  $\alpha$ . Mais, le faisceau de protons est mieux adapté pour les éléments plus lourds ( $Z > 25$ ).

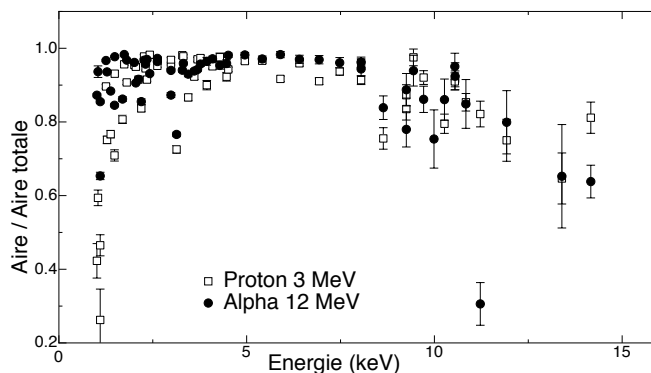


FIGURE 2.3 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 12 MeV et de protons de 3 MeV.

Les précédents résultats montrent qu'il n'est pas forcément intéressant d'augmenter trop l'énergie des particules  $\alpha$ . Pour compléter cette approche, plusieurs cibles minces représentatives de l'ensemble de la gamme des énergies des rayons X détectés ont été irradiées. Le tableau 2.6 reprend les résultats pour les différentes énergies des faisceaux de 8, 9 et 10 MeV pour les cibles minces d'Al et de Ca pour les éléments légers ; de Cu pour éléments intermédiaires ; et d'Ag pour les éléments plus lourds. Les raies K et L ont fait l'objet du dépouillement.

Le graphique 2.4 reprend la comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 8, 9 et 10 MeV. Les intensités suivent l'augmentation des sections efficaces de production, comme dans l'expérience antérieure, et ne sont donc plus discutées.

Le faisceau de 9 MeV montre les meilleurs rapports pour l'ensemble des rayons X de faibles énergies. La différence de rapport n'est cependant pas très grande. De plus le parcours dans la matière est une donnée inutile dans le cas des cibles minces. Le faisceau de 9 MeV donne donc de meilleures limites de détection, bien que la statistique et donc la précision de la mesure soit à l'avantage du faisceau de 12 MeV. Le faisceau doit donc être adapté en fonction du questionnement scientifique menant à la réalisation des expériences. Par exemple, la détection de traces ou la quantification de la matrice. Pour les rayons X d'énergie intermédiaire, la raie  $K_{\alpha}$  du cuivre

Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose	Aire	Aire normalisée	LOD	Aire / Aire totale
<b>Alpha</b>			8 MeV				
Elément	Energie (keV)	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Dose	Aire	Aire normalisée	LOD	Aire / Aire totale
Al	1,487	42,8	230000	25700	27900	90	0,97
Ag	2,984	46,6	230000	3800	4200	45	0,95
Ca	3,692	30,39	230000	2600	2800	15	0,99
Cu	8,048	52,1	230000	400	400	20	0,87
Ag	22,163	46,6	230000	2	2	7	0,31
			9 MeV a				
Al	1,487	42,8	250000	36700	36700	80	0,98
Ag	2,984	46,6	250000	6900	6900	55	0,96
Ca	3,692	30,39	250000	4600	4600	40	0,96
Cu	8,048	52,1	250000	800	800	20	0,96
Ag	22,163	46,6	250000	5	5	10	0,34
			10 MeV a				
Al	1,487	42,8	250000	39800	39800	130	0,95
Ag	2,984	46,6	250000	8800	8800	70	0,94
Ca	3,692	30,39	250000	5300	5300	50	0,95
Cu	8,048	52,1	250000	1300	1300	20	0,96
Ag	22,163	46,6	250000	25	25	10	0,78

TABLE 2.6 – Résultats des cibles minces irradiées avec des faisceaux de particules  $\alpha$  de 8, 9 et 10 MeV.

suggère que le faisceau de 8 MeV n’est pas adapté tandis que les deux autres faisceaux ont le même résultat. L’intensité des pics étant plus importante pour le faisceau de 10 MeV, il semble donc être plus adapté à ces énergies. Le cas des rayons X de plus haute énergie, au travers de la raie  $K_\alpha$  de 22,16 keV, confirme l’intérêt du faisceau de 10 MeV par rapport aux faisceaux de moindre énergie qui présentent des rapports bien plus faibles.

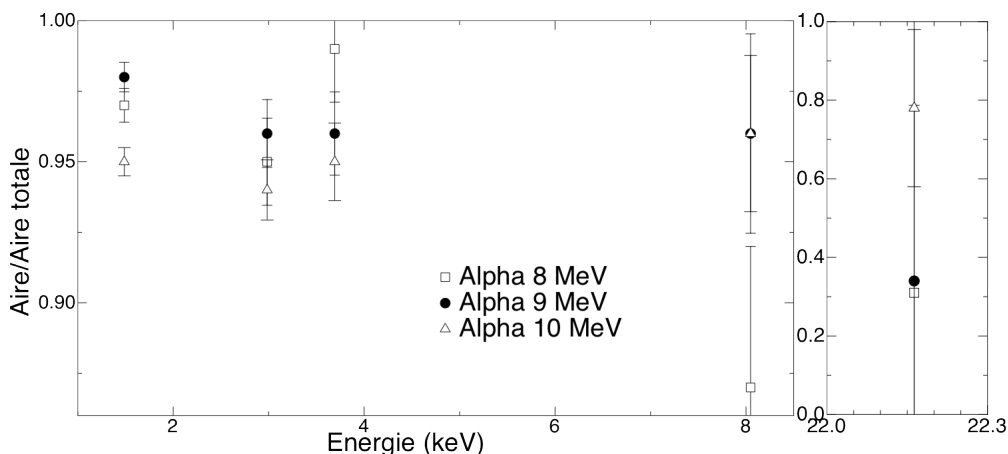


FIGURE 2.4 – Comparaison des rapports des intensités sur l’aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 8, 9 et 10 MeV.

## 2.2 Analyses de cibles épaisses

Le tableau 2.7 reprend l’ensemble des cibles épaisses irradiées au cyclotron de Liège. De plus, il compare les parcours dans la matière pour les différents couples énergie/particule envisagés :

- 3, 4, 5 MeV protons ;
- 6,7,8,9,10,11,12 MeV  $\alpha$ .

Les parcours ont été calculés à partir des densités, déduites à l’aide des concentrations élémentaires ou en oxyde par le logiciel “TRIM”, en utilisant le logiciel “Pyrrole” [68].

### 2.2.1 Cibles épaisses élémentaires

#### Protons

Le tableau 2.8 reprend les résultats obtenus avec les faisceaux de protons de 3 MeV et de plus haute énergie, 4 et 5 MeV, de la même manière que pour les cibles minces. Les astérisques ajoutés à la dose insistent sur le fait que les expériences ont été réalisées dans des configurations pour lesquelles la mesure de courant était différente.

Cible	Parcours ( $\mu m$ )							
	Proton	$\alpha$						
	3 MeV	6 MeV	7 MeV	8 MeV	9 MeV	10 MeV	11 MeV	12 MeV
Ca pur	167	59,8	75	91,6	110	129	150	172
Cu pur	34,5	13,7	16,7	20	23,5	27,5	31,6	34
Ag pur	31,5	14	17,25	20,75	24,5	28,5	33	37,5
A20	35,9	14,2			24,5			37,4
ROUX	72,5	26,1			48			75,5
DR-N	128	47			85,5			134

TABLE 2.7 – Parcours dans la matière des différentes conjectures énergie/particule pour les cibles épaisses irradiées.

Elément	Energie (keV)	Dose (coups)	Aire	Aire normalisée	LOD	Aire / aire Totale
<b>Proton</b>	<b>3 MeV</b>					
Ag	2,984	160000*	168200	168200	290	0,95
Ca	3,692	160000*	276700	276700	230	0,98
Cu	8,048	160000*	178400	178400	120	0,99
Ag	22,163	160000*	4300	4300	20	0,99
	<b>4 MeV</b>					
Ag	2,984	160000**	167000	167000	340	0,93
Ca	3,692	160000**	224700	224700	310	0,95
Cu	8,048	160000**	244800	244800	260	0,97
Ag	22,163	160000**	8400	8400	60	0,95
	<b>5 MeV</b>					
Ag	2,984	100000***	173900	278200	300	0,95
Ca	3,692	100000***	393400	629500	280	0,98
Cu	8,048	160000***	553300	553300	160	0,99
Ag	22,163	100000***	20600	32900	70	0,97

TABLE 2.8 – Résultats des analyses des cibles épaisses élémentaires pour les faisceaux de protons allant de 3 à 5 MeV. \*, \*\*, \*\*\* indiquent trois mesures de dose différentes.

Le graphique 2.5 compare les rapports des intensités sur l’aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de protons de 3, 4 et 5 MeV. Les rapports sont compris entre 0,93 et 1 pour l’ensemble de la gamme d’énergie des rayons X. Les raies L donnent un rapport compris entre 0,93 et 0,96 et les raies K entre 0,95 et 1. Le faisceau de 4 MeV a les plus mauvais résultats tandis que le faisceau de 5 MeV s’impose pour les énergies de rayons X faibles et intermédiaires. Pour

les rayons X de plus haute énergie, le faisceau de protons de 3 MeV donne le meilleur résultat. Il faut également tenir compte du fait que les sections de production de rayons X sont plus importantes à plus haute énergie et que, dans le cas des cibles épaisses, le parcours dans la matière augmente avec l'énergie des particules incidentes. Le faisceau de 5 MeV semble donc s'imposer en tenant compte des trois paramètres. Une attention particulière doit cependant être portée à l'augmentation des réactions nucléaires qui peuvent activer l'échantillon-cible mais également le nez d'extraction.

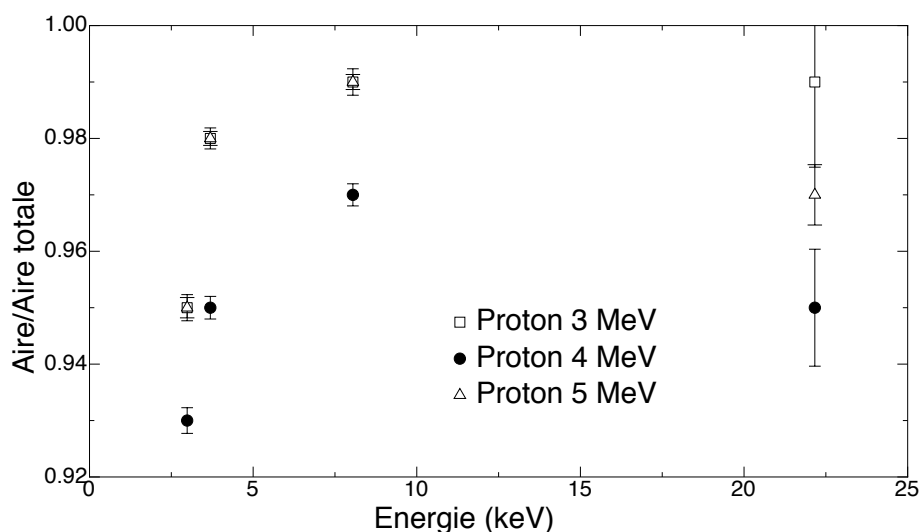


FIGURE 2.5 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de protons de 3, 4 et 5 MeV.

### Particules $\alpha$

Le tableau 2.9 présente les résultats obtenus avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de hautes énergies allant de 6 à 12 MeV.

Le graphique 2.6 compare les intensités normalisées pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules  $\alpha$  allant de 6 à 12 MeV. Les résultats sont en parfait accord avec la littérature (l'augmentation des sections



Elément	Energie (keV)	Dose (dose)	Aire	Aire normalisée	LOD	Aire / aire Totale
<b>Alpha</b>	<b>6 MeV</b>					
Ag	2,984	475000	115600	60900	210	0,96
Ca	3,692	475000	104000	54700	130	0,98
Cu	8,048	475000	24200	12700	60	0,98
Ag	22,163	475000	400	185	20	0,93
	<b>7 MeV</b>					
Ag	2,984	325000	110100	84700	210	0,96
Ca	3,692	325000	104000	80000	240	0,94
Cu	8,048	325000	25400	19600	50	0,99
Ag	22,163	325000	400	285	20	0,91
	<b>8 MeV</b>					
Ag	2,984	230000	90000	97800	220	0,95
Ca	3,692	230000	113400	123300	170	0,97
Cu	8,048	230000	40500	44000	70	0,98
Ag	22,163	230000	500	540	10	0,96
	<b>8,7 MeV</b>					
Ag	2,984	250000	164600	164600	260	0,96
Ca	3,692	250000	233400	233400	150	0,99
Cu	8,048	250000	77700	77700	120	0,98
Ag	22,163	250000	1300	1300	30	0,93
	<b>10 MeV</b>					
Ag	2,984	250000	203300	203300	380	0,93
Ca	3,692	250000	319900	319900	210	0,99
Cu	8,048	250000	131400	131400	180	0,97
Ag	22,163	250000	2200	2200	20	0,97
	<b>11 MeV</b>					
Ag	2,984	250000	203000	203000	440	0,91
Ca	3,692	250000	394000	394000	320	0,97
Cu	8,048	250000	165500	165500	230	0,96
Ag	22,163	250000	3100	3100	20	0,99
	<b>12 MeV</b>					
Ag	2,984	250000	260000	260000	340	0,95
Ca	3,692	250000	496100	496100	360	0,97
Cu	8,048	250000	250000	250000	160	0,99
Ag	22,163	250000	5700	5700	40	0,98

TABLE 2.9 – Résultats des analyses des cibles épaisses élémentaires pour les faisceaux de particules  $\alpha$  allant de 6 à 12 MeV.

efficaces de productions de rayons X avec l'énergie des particules incidentes pour toute la gamme d'énergie). Il semble que les différences entre les faisceaux augmentent cependant avec l'énergie de rayons X.

Le graphique 2.7 compare les rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires irradiées avec les faisceaux de particules  $\alpha$  allant de 6 à 12 MeV. Trois tendances semblent se dégager :

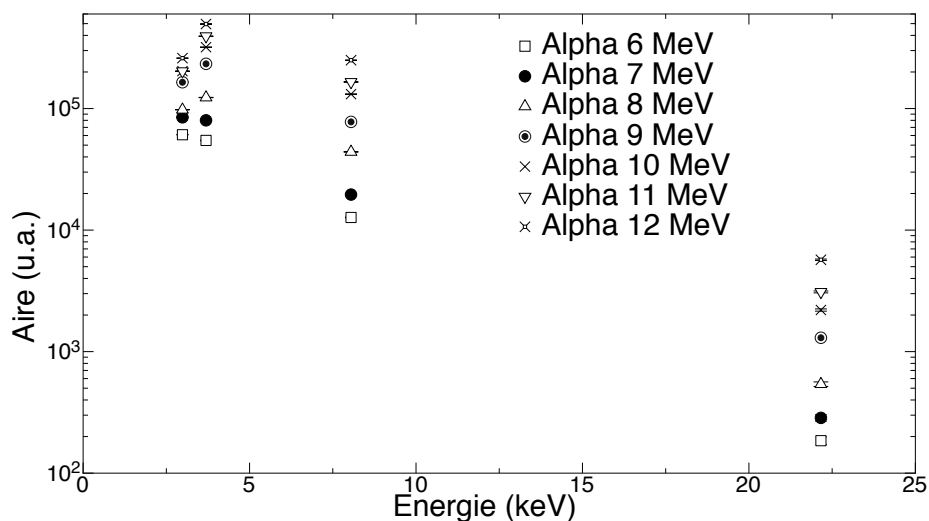


FIGURE 2.6 – Comparaison des intensités normalisées pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules  $\alpha$  allant de 6 à 12 MeV.

- Les raies  $L_\alpha$  du cuivre (0,93 keV) et de l'argent (3,151 keV) donnent un rapport compris entre 0,9 et 0,97 pour l'ensemble des faisceaux. Cependant aucune différence significative n'est observée entre les différents faisceaux. Cela suggère que le bruit de fond de Bremsstrahlung des particules  $\alpha$  est faible, ce qui est en accord avec la théorie.
- Pour les raies  $K\alpha$  du calcium (3,692 keV) et du cuivre (8,048 keV), le rapport est compris entre 0,965 et 0,99, traduisant un bruit de fond encore plus petit. Cependant aucune différence significative n'est observée entre les différents faisceaux.
- La raie  $K_\alpha$  de l'argent (22,16 keV) montre un rapport compris 0,9 et 1. Cette fois ci, une différence significative se dégage. En effet, le rapport s'améliore avec l'énergie des particules incidentes. Le phénomène s'explique par le fait que seuls les rayons X de haute énergie sont assez pénétrants pour être détectés lorsqu'ils sont émis dans les couches sondées les plus profondes.

Tous ces résultats prouvent donc bien qu'il ne sert à rien d'augmenter l'énergie des particules  $\alpha$  sans tenir préalablement compte de la

problématique à l'origine de l'expérience scientifique.

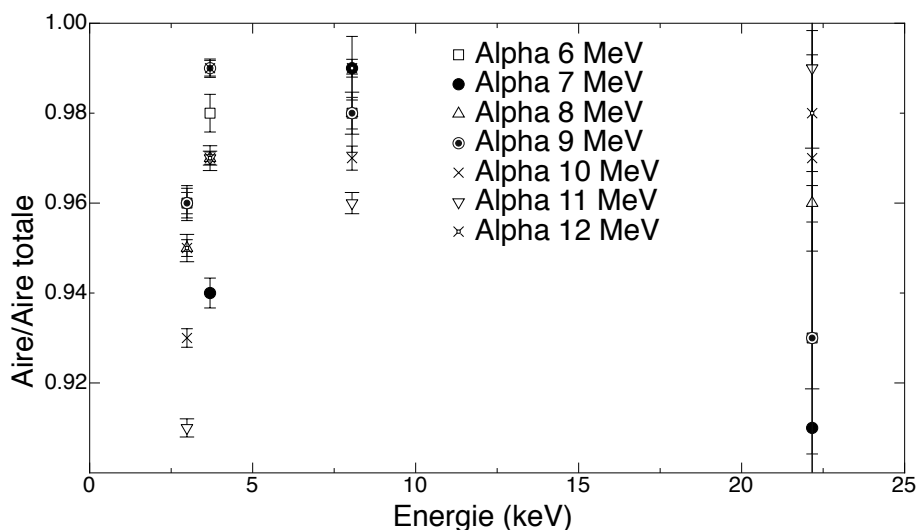


FIGURE 2.7 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules  $\alpha$  allant de 6 à 12 MeV.

Finalement, pour comparer des faisceaux dont les particules ont les mêmes vitesses, le graphique 2.8 reprend les rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 12 MeV et de protons de 3 MeV.

Les rapports sont compris entre 0,94 et 0,97 pour les raies  $L_\alpha$  et entre 0,97 et 1 pour les raies  $K_\alpha$ .

Ce rapport est meilleur aux basses énergies pour les particules  $\alpha$ , une nouvelle preuve de leur intérêt pour l'analyse des éléments légers. Le faisceau de protons reprend cependant l'avantage pour des éléments de rayons X de plus haute énergie ( $Z \geq 20$ ).

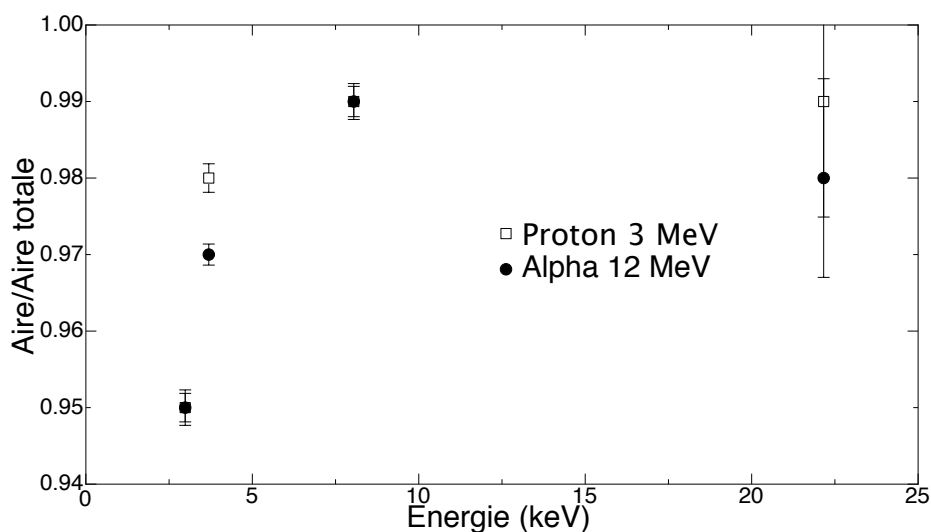


FIGURE 2.8 – Comparaison des rapports des intensités sur l’aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 12 MeV et de protons de 3 MeV.

### 2.2.2 Cibles minces multi-élémentaires de référence.

Afin de confirmer les résultats et les tendances observées avec des cibles épaisses élémentaires, des cibles de référence, proche des échantillons-cibles que les domaines de l’archéométrie et de l’industrie peuvent fournir, ont été également irradiées par des faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Le tableau 2.10 reprend les concentrations des oxydes des cibles épaisses de référence de roche, DR-N, et de verre, ROUX tandis que le tableau 2.11 reprend les concentrations élémentaires de la cible épaisse de référence en bronze, A20.

Les trois tableaux suivants, 2.12, 2.13 et 2.14, reprennent ensuite les résultats de l’analyse des cibles multi-élémentaires de référence, respectivement le bronze, la roche et le verre pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Oxyde	Concentration (%)	
	DR-N	ROUX
SiO <sub>2</sub>	52,85±0,19	70,995
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17,52±0,14	0,569
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> T	9,7±0,07	0,087
MnO	0,22±0,006	0,0196
MgO	4,4±0,07	4,6
CaO	7,05±0,06	9,69
Na <sub>2</sub> O	2,99±0,06	13,85
K <sub>2</sub> O	1,7±0,03	0,083
TiO <sub>2</sub>	1,09±0,02	0,039
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0,25±0,05	
SO <sub>3</sub>		0,087
Densité	1,55	2,715

TABLE 2.10 – Concentrations des oxydes des cibles épaisses de référence de roche et de verre.

Elément	Concentration (%)
A20	
Cu	82,52
Zn	4,62
Sn	6,37
Fe	0,15
Ni	0,46
Pb	0,559
Sb	0,29
Densité	8,75

TABLE 2.11 – Concentrations élémentaires de la cible épaisse de référence en bronze.

Les graphiques 2.9, 2.10 et 2.11 reprennent, quant à eux, les trois spectres des cibles multi-élémentaires de référence, respectivement le bronze, la roche et le verre pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Ils mettent clairement en évidence l'augmentation de l'intensité des rayons X et l'augmentation du bruit de fond pour l'ensemble de la gamme d'énergie des rayons X.

Elément	Raie	Energie (keV)	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>A20</b>						
<b>Alpha</b>	<b>6 MeV</b>					
Pb	M	2,345	6000	625	45	0,74
Sn	L	3,444	6000	1600	40	0,91
Sb	L	3,605	6000	0	0	
Fe	K	6,405	6000	115	10	0,90
Ni	K	7,478	6000	280	20	0,87
Cu	K	8,048	6000	39800	20	0,99
Zn	K	8,639	6000	1570	90	0,62
Pb	L	10,55	6000	400	15	0,93
Sn	K	25,27	6000	30	10	0,68
Sb	K	26,36	6000	0	0	
<b>Alpha</b>	<b>9 MeV</b>					
Pb	M	2,345	4000	3600	120	0,69
Sn	L	3,444	4000	11500	105	0,90
Sb	L	3,605	4000	0	0	
Fe	K	6,405	4000	1550	70	0,73
Ni	K	7,478	4000	3650	115	0,71
Cu	K	8,048	4000	553500	80	0,99
Zn	K	8,639	4000	23100	430	0,53
Pb	L	10,55	4000	5250	50	0,95
Sn	K	25,27	4000	580	13	0,97
Sb	K	26,36	4000	22	11	0,61
<b>Alpha</b>	<b>12 MeV</b>					
Pb	M	2,345	4000	5150	165	0,62
Sn	L	3,444	4000	17250	170	0,84
Sb	L	3,605	4000	0	0	
Fe	K	6,405	4000	2500	250	0,26
Ni	K	7,478	4000	6150	275	0,42
Cu	K	8,048	4000	944400	340	0,985
Zn	K	8,639	4000	34750	950	0,25
Pb	L	10,55	4000	8300	240	0,57
Sn	K	25,27	4000	1350	30	0,935
Sb	K	26,36	4000	90	40	0,32

TABLE 2.12 – Récapitulatifs des résultats de la cible de bronze pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Elément	Energie (keV)	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>DR-N</b>					
<b>Alpha</b>	<b>6 MeV</b>				
Na	1,041	6000	350	90	0,27
Mg	1,254	6000	815	170	0,2
Al	1,487	6000	6550	220	0,55
Si	1,74	6000	20400	150	0,89
P	2,01	6000	0	0	
K	3,314	6000	1200	40	0,89
Ca	3,692	6000	4180	55	0,92
Ti	4,511	6000	340	15	0,93
Mn	5,899	6000	55	10	0,81
Fe	6,405	6000	1300	40	0,88
<b>Alpha</b>	<b>9 MeV</b>				
Na	1,041	12000	8250	420	0,29
Mg	1,254	12000	17100	770	0,21
Al	1,487	12000	132300	1000	0,54
Si	1,74	12000	405650	700	0,88
P	2,01	12000	0	0	
K	3,314	12000	31900	295	0,77
Ca	3,692	12000	111400	390	0,87
Ti	4,511	12000	9700	120	0,86
Mn	5,899	12000	1640	70	0,75
Fe	6,405	12000	47400	200	0,92
<b>Alpha</b>	<b>12 MeV</b>				
Na	1,041	12000	6450	470	0,20
Mg	1,254	12000	14620	810	0,17
Al	1,487	12000	127750	1060	0,5
Si	1,74	12000	413000	745	0,87
P	2,01	12000	0	0	
K	3,314	12000	44580	375	0,74
Ca	3,692	12000	160850	470	0,87
Ti	4,511	12000	16800	190	0,80
Mn	5,899	12000	3150	140	0,585
Fe	6,405	12000	111600	180	0,97

TABLE 2.13 – Récapitulatifs des résultats de la cible de roche pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Le graphique 2.12 présente la comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de bronze avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Elément	Energie (keV)	Dose (coups)	Aire	LOD	Aire / Aire totale
<b>ROUX</b>					
<b>Alpha 6 MeV</b>					
Na	1,041	6000	1725	70,9	0,755
Mg	1,254	6000	520	122,3	0,24
Al	1,487	6000	370	196,9	0,079
Si	1,74	6000	27400	171,9	0,89
P	2,01	6000	0	0	
S	2,308	6000	97	23,3	0,62
K	3,314	6000	10	35,8	0,075
Ca	3,692	6000	4775	42	0,96
Ti	4,511	6000	10	9	0,53
Mn	5,899	6000	0	0	
Fe	6,405	6000	10	10	0,46
<b>Alpha 9 MeV</b>					
Na	1,041	12000	45450	230	0,89
Mg	1,254	12000	11600	615	0,22
Al	1,487	12000	3050	1030	0,025
Si	1,74	12000	600250	920	0,86
P	2,01	12000	0	0	0
S	2,308	12000	1860	260	0,2
K	3,314	12000	950	310	0,08
Ca	3,692	12000	141500	280	0,94
Ti	4,511	12000	350	140	0,14
Mn	5,899	12000	25	60	0,05
Fe	6,405	12000	350	50	0,57
<b>Alpha 12 MeV</b>					
Na	1,041	12000	45680	360	0,76
Mg	1,254	12000	12590	680	0,2
Al	1,487	12000	6300	1140	0,04
Si	1,74	12000	686570	985	0,865
P	2,01	12000	410	395	0,02
S	2,308	12000	2030	320	0,15
K	3,314	12000	1460	385	0,08
Ca	3,692	12000	230500	200	0,93
Ti	4,511	12000	590	210	0,11
Mn	5,899	12000	160	120	0,089
Fe	6,405	12000	920	1110	0,41

TABLE 2.14 – Récapitulatifs des résultats de la cible de verre pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Les rayons X d'énergie inférieur à 7,5 keV sont représentatifs des éléments de faibles compositions aux travers des raies K, L et M :  $\text{SnL}_\alpha$ ,  $\text{PbM}_\alpha$ ,  $\text{FeK}_\alpha$



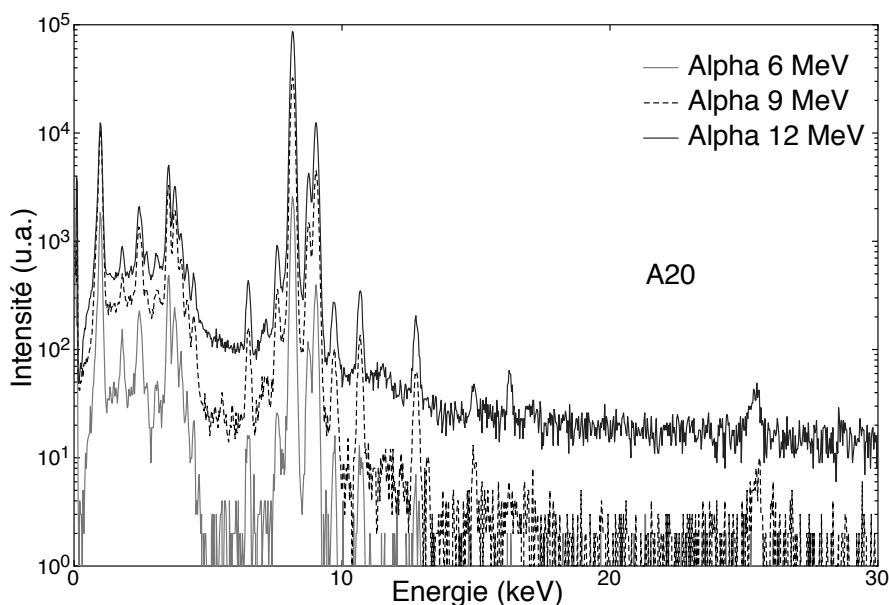


FIGURE 2.9 – Spectres de la cible mince de référence de bronze pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

et  $\text{NiK}_\alpha$ . Pour ces raies, le faisceau de 6 MeV donne clairement le meilleur rapport de l'intensité sur l'aire totale, mais l'intensité des rayons X est vraiment très faible. Le rapport est diminué à plus haute énergie à cause du “peak tailing” du pic de cuivre qui possède une énorme statistique. Un filtre de cobalt, pourrait diminuer l'intensité des rayons X du cuivre arrivant au détecteur et ainsi diminuer cet effet. Bien que l'intensité soit bien plus importante pour le faisceau de 12 MeV, le faisceau de 9 MeV semble être le plus indiqué pour ces raies.

La raie  $\text{K}_\alpha$  du cuivre, élément de loin majoritaire, montre un rapport identique pour les faisceaux de 6 et 9 MeV alors qu'il diminue très légèrement à 12 MeV. L'intensité étant plus importante, le faisceau de 12 MeV est plus adapté à la détection de cet élément intermédiaire majoritaire.

La raie  $\text{K}_\alpha$  du Zinc, qui n'est que 0,6 keV plus énergétique, ne donne pas les mêmes résultats de part sa concentration très faible. Le rapport est le meilleur pour le faisceau de 6 MeV mais il montre une intensité bien trop faible. Le faisceau de 9 MeV est donc également plus adapté dans le cas d'un élément intermédiaire de faible concentration au vu de la baisse importante du rapport pour le faisceau de 12 MeV.

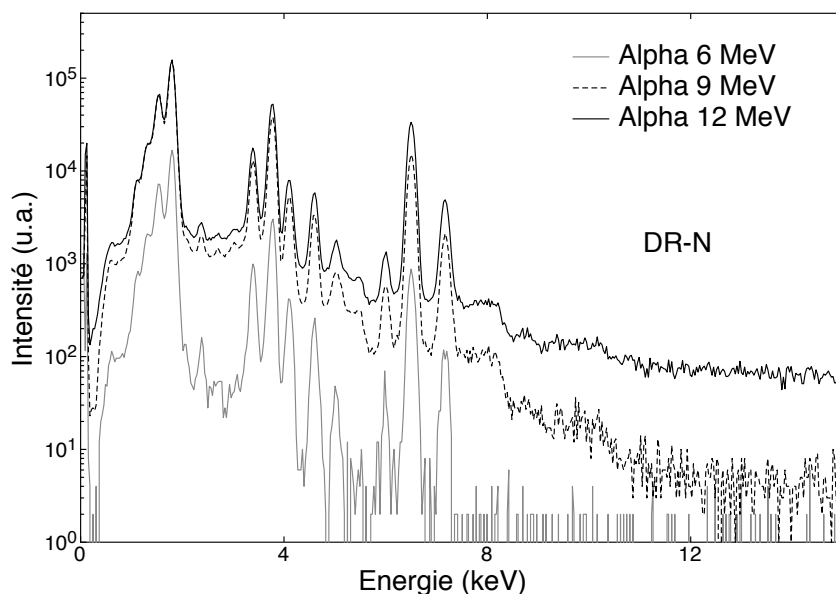


FIGURE 2.10 – Spectres de la cible mince de référence de roche pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Les raies plus énergétiques des éléments  $\text{PbL}_\alpha$ ,  $\text{SnK}_\alpha$ ,  $\text{SbK}_\alpha$  montrent également un meilleur rapport pour le faisceau de 9 MeV malgré des intensités plus faible que le faisceau de 12 MeV.

Le faisceau de 9 MeV ressort donc comme le grand vainqueur pour l'ensemble des éléments de faibles concentrations nécessitant un bruit de fond faible présents dans l'échantillon de référence de bronze. L'élément majoritaire étant moins sensible au bruit de fond donne de meilleurs résultats avec le faisceau plus énergétique.

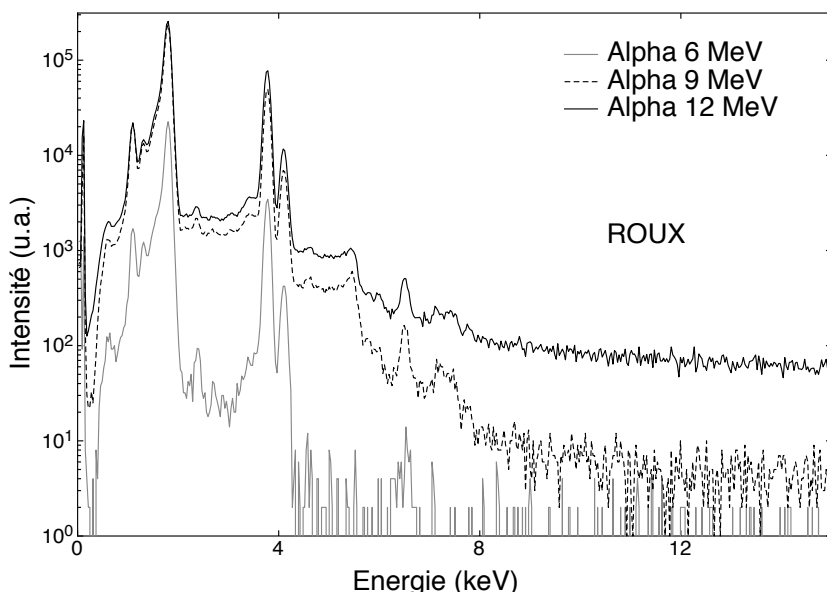


FIGURE 2.11 – Spectres de la cible mince de référence de bronze pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Le graphique 2.13 présente la comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de roche avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Tous les éléments constitutifs de la roche sont légers et sont donc analysés par leurs raies  $K_{\alpha}$ .

Les résultats obtenus pour les éléments Na et Mg de petite concentration corroborent l'intérêt du faisceau de 9 MeV puisqu'il présente les meilleurs rapports (pourtant très faible) et les meilleures intensités. Les rapports du faisceau de 6 MeV sont quasi identiques, mais leurs intensités sont désespérément basses. De plus, les rayons X de 1,042 et 1,254 keV sont fortement atténué et ne sont donc représentatif que des premières couches du volume sondé.

L'Al, en plus grande quantité, montre le même comportement mais avec un rapport plus important que les deux premiers éléments.

Le Si, élément majoritaire dans la roche, a des rapports proches pour les différentes faisceaux mais favorisant les faisceaux de faibles énergies. Cependant l'intensité est bien plus importante avec le faisceau de 12 MeV qui est

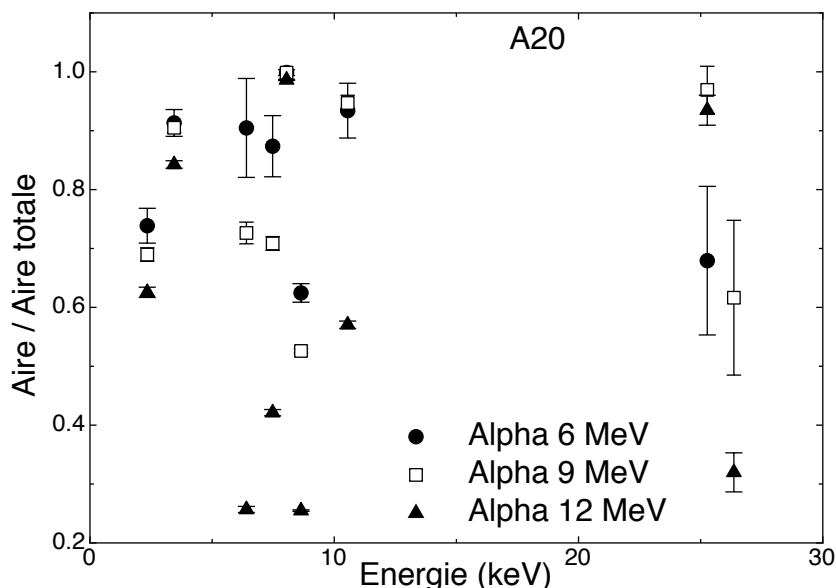


FIGURE 2.12 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de bronze avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

donc mieux adapté ici.

Les éléments du Ca au Ti, avec des petites et des moyennes concentrations, mettent en évidence les excellents rapports du faisceau de 6 MeV. Les deux autres faisceaux ont des rapports légèrement inférieurs mais proches l'un de l'autre. Par contre, l'intensité à 6 MeV est très faible, ce qui permet au faisceau de 12 MeV de se mettre en exergue.

Le Mn, possédant une très petite concentration a son meilleur rapport pour le faisceau de 6 MeV. Le faisceau de 9 MeV a un rapport légèrement inférieur mais possède une intensité bien supérieure. Cependant, même si le rapport du faisceau de 12 MeV est plus faible, l'intensité est double par rapport au faisceau de 9 MeV.

Le Fe présent en grande quantité montre quant à lui les meilleurs résultats pour le faisceau de 12 MeV pour l'ensemble des paramètres.

Le faisceau de 9 MeV est donc plus adapté pour les éléments très légers jusqu'à l'Al. Et ensuite, le faisceau de 12 MeV s'impose pour la suite des éléments, d'abord faiblement et de manière indiscutable pour les rayons X

de plus haute énergie.

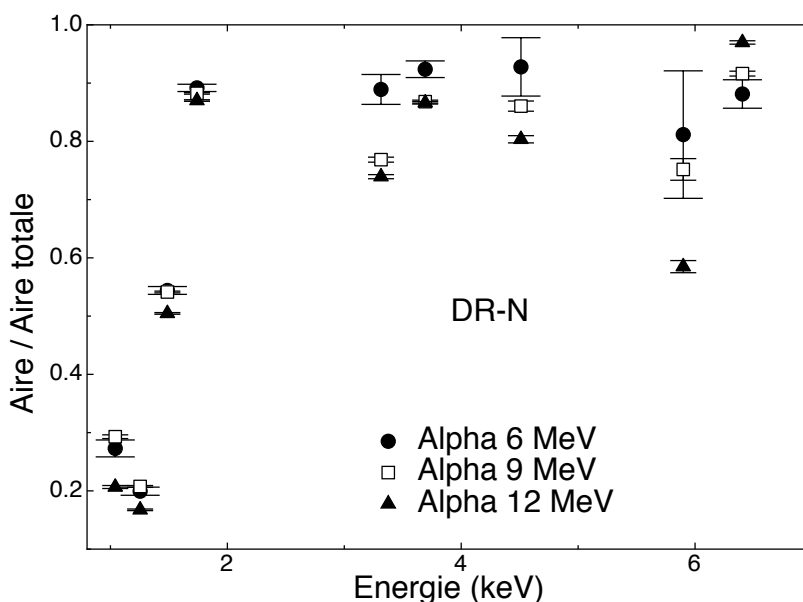


FIGURE 2.13 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de roche avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Le graphique 2.14 présente la comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de verre avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

Tous les éléments constitutifs du verre sont également légers et sont donc analysés par leurs raies  $K_{\alpha}$ .

Le Na, en grande quantité, montre un rapport largement supérieur pour le faisceau de 9 MeV et une intensité comparable pour les faisceaux de 9 et 12 MeV. Le faisceau de 9 MeV semble être le mieux adapté pour les éléments vraiment très légers. Pour le reste des éléments, le faisceau de 12 MeV semble mieux convenir.

Le Si, élément majoritaire dans le verre, a un rapport très légèrement supérieur à 6 MeV et identique à 9 et 12 MeV. Les intensités sont par contre largement à l'avantage du faisceau de 12 MeV.

Le Ca montre des résultats comparables.

Le Mg, pourtant en grande concentration, montre des rapports très faibles

et inversement proportionnels à l'énergie du faisceau. L'intensité obtenue à 6 MeV est cependant trop faible et dans le cas présent, le faisceaux de 9 MeV et de 12 MeV semblent être tous les deux compétitifs.

Une grande partie des autres éléments en quantité infime présente des résultats sensiblement similaires. L'Al, le K, le Ti, le S ont des rapports vraiment très faibles et des intensités maximisées à 12 MeV. Le cas du P est simple puisqu'il n'est détecté qu'à 12 MeV.

Finalement, le Fe présente un rapport nettement supérieur à 9 MeV mais son intensité triple pour le faisceau de 12 MeV.

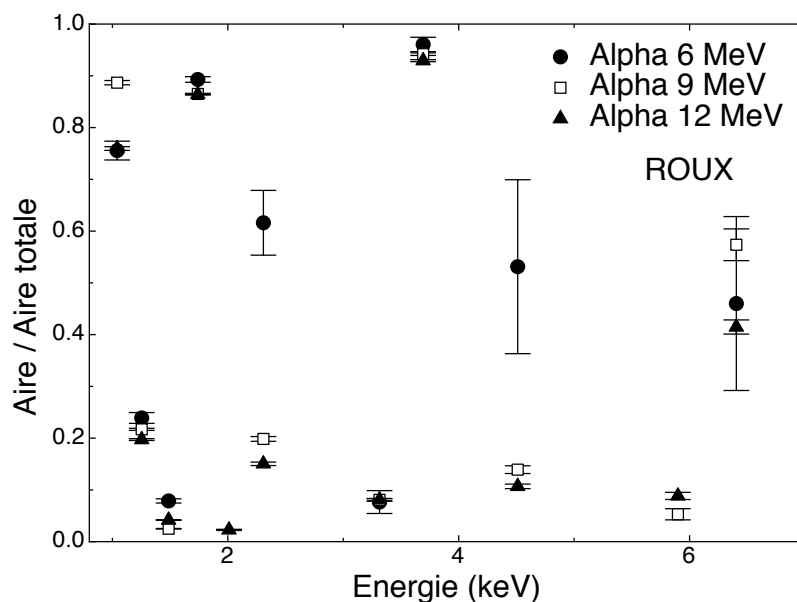


FIGURE 2.14 – Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de verre avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6, 9 et 12 MeV.

## 2.3 Conclusion

Il ressort de l'étude que le faisceau de particules  $\alpha$  de 9 MeV semble être le mieux adapté pour l'étude des éléments "très légers" par la méthode PIXE.

Par contre, pour les éléments légers, il y a une compétition entre les faisceaux de particules  $\alpha$  de 9 MeV et de 12 MeV. Le faisceau de 9 MeV a de meilleurs rapports intensité sur bruit, ce qui permettrait une quantification de ces éléments présents en concentration suffisante dans l'échantillon.

Cependant, pour les éléments "trace" le faisceau de 12 MeV semble mieux adapté.

Finalement, pour les éléments lourds le faisceau de protons de 3 MeV sera préféré.





# Conclusion

Le choix de se porter sur l'étude des faisceaux de particules  $\alpha$  et non de protons s'est fait sur base de quelques considérations scientifiques. En effet, les particules  $\alpha$  à cause de leur masse plus importante pénètrent moins en profondeur dans la matière que des particules plus légères, des protons en l'occurrence.

De surcroît, il est bien connu que ces mêmes particules  $\alpha$  produisent un rayonnement de Bremsstrahlung moindre que dans le cas des faisceaux de protons et ce également à cause de leur masse plus importante. La limite de détection des éléments constitutifs des échantillons va dès lors s'en voir améliorée.

Pour confirmer ce fait, des analyses ont été réalisées sur différents échantillons avec deux faisceaux de nature différente.

Les résultats présentés révèlent clairement que les faisceaux de particules  $\alpha$  peuvent être utile dans le cadre des études des objets du patrimoine culturel ou industriels. Mais même si l'intensité des pics augmentent avec l'énergie du faisceau, il est important de garder en tête que le bruit de fond augmente également et pour certains éléments plus vite que l'intensité du pic. Il semble, dès lors, que les faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie sont bien appropriés pour la détection des éléments légers mais moins pour celle des éléments lourds. Il faut également garder en mémoire, qu'en fonction de l'énergie le faisceau interagira plus ou moins en profondeur et il faut donc tenir compte de la profondeur que l'on désire analyser lors du choix du faisceau. De plus les rayons de faibles énergie étant atténués de manière plus importante dans la matière, ne seront pas détectés ou à faibles intensités lorsqu'ils sont émis en profondeur.

Bien que le faisceau de 6 MeV  $\alpha$ , de l'accélérateur linéaire de 2 MV, a déjà montré de bonnes dispositions pour l'analyse de couches de surface, la possibilité d'extraire des faisceaux plus énergétiques a été étudiée au cyclotron de Liège. Le cas des protons de haute énergie n'est pas envisagé.

En effet, l'énergie des faisceaux de protons est conventionnellement limitée à 3 MeV (même si l'accélérateur peut aller jusqu'à 20 MeV) afin d'éviter l'apparition de nombreuses réactions nucléaires à plus haute énergie et ainsi d'activer le matériau. Des expériences basées sur l'utilisation de protons de haute énergie sont cependant ponctuellement réalisées sur des échantillons essentiellement composés d'éléments lourds [69][70].

Suite à ces considérations, l'énergie des particules  $\alpha$  a été étudiée de 6 (l'énergie la plus faible pouvant être extraite au cyclotron) à 12 MeV. Cette énergie permet d'obtenir des rapports énergie sur masse constants entre les deux types de faisceaux de protons ou de particules  $\alpha$ . Ainsi le parcours dans le matériau sondé est comparable.

Les faisceaux de 9 et 12 MeV ont chacun montrés leurs compétitivité pour répondre à des problématiques scientifiques différentes.

L'utilisation de ce type de faisceaux présente un réel intérêt pour les études de couches, que ce soit des couches de corrosions ou des patines, intentionnelles ou non, présentes en surface.

De plus, la méthode RBS pourrait simultanément profiter de l'excellente résolution en énergie des faisceaux de particules  $\alpha$ . Ce type de faisceaux semble donc être un compromis idéal pour l'analyse PIXE/RBS d'échantillons présentant des couches de surface, préférentiellement composées d'éléments légers.

Les expériences préliminaires réalisées en 2008 ont démontré l'intérêt des faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie, même s'il reste des paramètres à affiner avant de pouvoir procéder à des analyses semi-quantitatives ou quantitatives.

En effet, la majorité des sections efficaces de production de rayons X et d'ionisation pour les particules incidentes  $\alpha$  de haute énergie demeurent inconnues ou sujettes à de nombreuses erreurs. Elles sont le sujet d'un autre projet lancé par le CEA. Les campagnes d'analyses sur d'autres cibles (fines et épaisses) dans cette perspective font d'ailleurs l'objet de la dernière partie de la thèse.

## Cinquième partie

# Sections efficaces de production de rayons X



# Introduction

Le projet tend à combler le manque de base de données existant pour les sections efficaces de production de rayons X avec des particules  $\alpha$  de haute énergie.

Après avoir présenté les modèles théoriques des sections efficaces d'ionisation, la méthode de mesure des sections efficaces de production de rayons X est mise au point.

Les résultats de ces mesures réalisées sur des cibles minces élémentaires sont comparés aux données théoriques et de référence afin de valider les nouvelles bases de données.



# Chapitre 1

## Section efficace d'ionisation

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Modèles théoriques . . . . .</b>	<b>285</b>
1.1.1	PWBA . . . . .	285
1.1.2	ECPSSR . . . . .	291
1.1.3	Correction de liaison . . . . .	292
1.1.4	Correction de la déviation coulombienne . . . . .	293
1.1.5	Correction relativiste . . . . .	294
1.1.6	Correction de perte d'énergie . . . . .	294
<b>1.2</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>294</b>

---

Dans ce chapitre, les deux modèles d'ionisation acceptés par la communauté scientifique sont décrits. Il s'agit du modèle PWBA et du modèle ECPSSR [71].

### 1.1 Modèles théoriques

#### 1.1.1 PWBA

Le premier modèle théorique des sections efficaces d'ionisation est le modèle PWBA, "Plane Wave Born Approximation" [72].

Ce modèle est basé sur la diffusion élastique et l'approximation de Born, De plus certaines approximations existent pour simplifier le traitement analytique :

- les particules sont supposées sans spin ;
- la structure interne des particules incidentes et de la cible n'est pas prise en compte ;

- la cible est une cible mince, ce qui empêche toute diffusion multiple ;
- il n'y a pas de cohérence entre les ondes diffusées par les différentes particules de la cible. Ceci permet de considérer le flux de particules détectées comme la somme des flux diffusés par chacune des  $N$  particules de la cible ou comme  $N$  fois le flux diffusé par l'une des particules de la cible ;
- l'interaction entre la particule incidente et la particule cible se fait via un potentiel de la forme  $V(r_1 - r_2)$  où  $r_1$  et  $r_2$  sont respectivement les vecteurs positions des particules incidente et cible.

De plus, on se place dans le système du centre de masse, c'est-à-dire que l'on considère la diffusion d'une particule unique par le potentiel  $V(r)$  dont la masse est  $\mu$  définie comme :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \quad (1.1)$$

où  $M_1$  et  $M_2$  sont respectivement les masses des particules incidente et cible.

La section efficace différentielle de diffusion  $\sigma(\theta, \phi)$  est alors définie comme :

$$dn = F_i \sigma(\theta, \phi) d\Omega \quad (1.2)$$

avec  $dn$  étant le nombre de particules détectées,  $F_i$ , le flux incident de particules et  $d\Omega$  l'angle solide de détection.

Tandis que la section efficace de diffusion est calculée grâce à l'équation de Schrödinger. Soit l'hamiltonien :

$$H = H_0 + V(r) \quad (1.3)$$

avec  $H_0$ , l'énergie cinétique du centre de masse,

$$H_0 = \frac{p^2}{2\mu} \quad (1.4)$$

L'équation décrivant l'évolution de la particule diffusée par le potentiel  $V(r)$  admet des solutions d'énergie  $E$  bien définies :

$$\psi(r, t) = \varphi(r) e^{\frac{iEt}{\hbar}} \quad (1.5)$$

où  $\varphi(r)$  est solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta + V(r) \right] \varphi(r) = E \varphi(r). \quad (1.6)$$



L'énergie  $E$  représente l'énergie cinétique de la particule incidente avant qu'elle n'ait abordé la zone d'action du potentiel. On pose alors

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \quad (1.7)$$

et

$$V(r) = \frac{\hbar^2}{2\mu} U(r). \quad (1.8)$$

L'équation de Schrödinger devient alors

$$[\Delta + k^2 - U(r)]\varphi(r) = 0. \quad (1.9)$$

Cette équation admet une infinité de solutions pour tout  $k$  (c'est-à-dire pour tout  $E$ ). Certaines conditions pour limiter la gamme de solutions possibles doivent être imposées. Les états stationnaires de diffusion sont définis comme étant les états propres de l'hamiltonien qui vérifient ces conditions et on appelle  $v_k^{diff}(r)$  les fonctions d'onde associées. Pour des temps très négatifs, la particule peut être considérée comme libre car  $V(r)$  est négligeable. L'état est donc formé d'un paquet d'ondes planes. Par contre, pour des temps très grands, la particule est sortie de la zone d'action de  $V(r)$  et le paquet d'onde décrivant le système est composé du paquet d'ondes transmises poursuivant leur propagation dans le même sens et du paquet d'ondes diffusées. La fonction  $v_k^{diff}(r)$  représentant l'état stationnaire de diffusion associée à une énergie  $E$  est donc la superposition d'une onde plane et d'une onde diffusée :

$$v_k^{diff}(r) = e^{ikz} + \text{onde diffusée}. \quad (1.10)$$

De plus, l'onde diffusée doit présenter certaines caractéristiques pour des  $r$  élevés :

- dans une direction  $(\theta, \varphi)$  donnée, sa dépendance radiale est en  $\frac{e^{ikr}}{r}$ . En effet, c'est une onde divergente de même énergie que l'onde incidente. Le facteur  $r^{-1}$  provient des trois dimensions :

$$(\Delta + k^2)e^{ikr} \neq 0 \quad (1.11)$$

alors que

$$(\Delta + k^2)\frac{e^{ikr}}{r} = 0 \quad (1.12)$$

pour  $r \geq r_0$  quelconque.

- la diffusion n'est généralement pas isotrope, ce qui entraîne que l'amplitude de diffusion est une fonction de  $(\theta, \varphi)$ .

Le comportement asymptotique de la fonction d'onde peut donc s'écrire :

$$v_k^{diff}(r)_{r \rightarrow \infty} = e^{ikz} + f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (1.13)$$

où  $f_k(\theta, \varphi)$  est l'amplitude de diffusion. Et la section efficace différentielle de diffusion est égale à

$$\sigma(\theta, \varphi) = |f_k(\theta, \varphi)|^2. \quad (1.14)$$

D'autre part, l'amplitude de diffusion  $f_k(\theta, \varphi)$  peut être évaluée par la fonction :

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r e^{-ik_d r} U(r) v_k^{diff}(r) \quad (1.15)$$

où  $k_d$  est le vecteur d'onde diffusé. L'approximation de Born consiste alors à remplacer l'état propre exact dans l'intégrale par une onde plane, en négligeant l'onde diffusée. Et de ce fait,

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r e^{-ik_d r} U(r) e^{ik_i r} \quad (1.16)$$

où  $k_i$  est le vecteur d'onde incident. La section efficace de diffusion peut alors s'écrire dans l'approximation de Born :

$$\sigma^{PWBA}(\theta, \varphi) = \frac{\mu^2}{4\pi^2 \hbar^4} \left| \int d^3r e^{iqr} V(r) \right|^2 \quad (1.17)$$

avec  $q = k_i - k_d$  le vecteur d'onde transféré.

En PIXE, l'ionisation de l'atome est réalisée par une particule chargée. Il faut donc en tenir compte pour établir la théorie des sections efficaces.

Dans le développement du modèle PWBA, l'approximation de Born est utilisée dans la théorie de la diffusion pour décrire l'interaction entre la particule chargée incidente (par exemple un proton) et l'atome cible. Il considère que l'ionisation se fait via la seule interaction coulombienne entre le noyau de la particule incidente et les électrons de la cible. Pour pouvoir appliquer l'approximation de Born, il faut faire quelques hypothèses :

- le projectile peut être considéré comme une charge ponctuelle ;
- les états initial et final sont des ondes planes ;
- les états des électrons de la cible sont ceux de l'atome non perturbé.

Si l'approximation de Born est utilisée pour l'ionisation d'un atome par une particule chargée, la section efficace différentielle d'ionisation devient :

$$d\sigma_n^{PWBA}(\theta, \varphi) = \frac{\mu^2}{4\pi^2\hbar^4} \frac{v_d}{v_i} \left| \int d^3r d^3R \phi_n^*(r) e^{iqR} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{|R-r|} \phi_n(r) \right|^2 d\Omega \quad (1.18)$$

où  $R$  est le vecteur position de la particule incidente par rapport à l'atome,  $v_d$  et  $v_i$  sont les vitesses relatives avant et après diffusion,  $r$  est la position de l'électron atomique par rapport au noyau,  $\phi_n^*(r)$  et  $\phi_n(r)$  sont les fonctions d'onde initiale et finale de l'électron et  $Z_1$  est le numéro atomique de la particule incidente. L'état initial de l'électron est caractérisé par les nombres quantiques  $(n_2, l_2, j_2)$ . Par exemple, on aura  $(1, 0, 1/2)$  pour l'orbite K. Par la suite, les indices 1 et 2 se référeront toujours respectivement aux particules incidente et cible. Cette expression peut être réduite à une forme plus simple en intégrant sur les coordonnées de la particule et introduisant à la place de l'angle de diffusion, le vecteur d'onde transféré :

$$d\sigma_n^{PWBA}(q) = 4\pi(2j_2 + 1) \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{dq}{q^3} \left| \int d^3r \phi_n^*(r) e^{iqR} \phi_n(r) \right|^2. \quad (1.19)$$

Et si, le facteur de forme

$$F_n(q) = \int d^3r \phi_n^*(r) e^{iqR} \phi_n(r), \quad (1.20)$$

alors,

$$d\sigma_n^{PWBA}(q) = 4\pi(2j_2 + 1) \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_n(q)|^2. \quad (1.21)$$

Le but est de calculer la section efficace d'ionisation d'un électron d'une orbite  $s$  ( $s=K, \dots$ ) d'énergie d'ionisation  $I_{2s}$  vers l'état libre d'énergie  $\epsilon$  par une particule chargée avec

$$\epsilon = I_{2s} + T \quad (1.22)$$

où  $T$  est l'énergie cinétique de l'électron et est égale à

$$T = \frac{\hbar^2 K^2}{2m_e} \quad (1.23)$$

où  $K$  est le vecteur d'onde de la fonction d'onde de l'électron éjecté. La formule de la section efficace d'ionisation pour des énergies des électrons

entre  $\epsilon$  et  $\epsilon + d\epsilon$  devient :

$$d^2\sigma_{\epsilon_s}^{PWBA}(q) = 8\pi(2j_2 + 1) \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{\epsilon_s}(q)|^2 d\epsilon. \quad (1.24)$$

La conservation de l'énergie limite les valeurs du vecteur d'onde transféré  $q$  :

$$\hbar^2 q_{min}^2 = 2\mu(\sqrt{E} - \sqrt{E - \epsilon})^2 \approx \frac{1}{2}\mu \frac{\epsilon^2}{E} = \frac{1}{2}M_1 \frac{I_{2s}^2}{E_1}, \quad (1.25)$$

$$\hbar^2 q_{max}^2 = 2\mu(\sqrt{E} + \sqrt{E - \epsilon})^2 \approx 8\mu E. \quad (1.26)$$

Et si, les quantités sans dimension  $W$ ,  $k$  et  $Q$  sont introduites :

$$W = \frac{\epsilon}{Z_{2s}^2 R}, k = a_{2s} K, Q = a_{2s}^2 q^2 \quad (1.27)$$

avec la constante de Rydberg  $R$  (13,6 eV) et  $a_{2s} = \frac{a_0}{Z_{2s}}$  où  $a_0$  est le rayon de Bohr et  $Z_{2s}$  est la charge électrique effective du noyau de l'atome cible vu par un électron de l'orbite  $s$  ( $Z_{2K} = Z_2 - 0,3$  et  $Z_{2L_i} = Z_2 - 4,15$ ). La section efficace d'ionisation peut donc être réécrite sous la forme :

$$\sigma_s = 4\pi(2j_2 + 1) \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_1 e^2}{\hbar v} \right)^2 \frac{a_0^2}{Z_{2s}^2} \int_{W_{min}}^{W_{max}} dW \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{W_s}(Q)|^2. \quad (1.28)$$

Les quantités sans dimensions qui sont  $\theta_s$  et  $\eta_s$  qui sont respectivement l'énergie réduite de liaison atome-électron et l'énergie réduite de l'ion sont introduites

$$\theta_s = n_{2s}^2 \frac{I_{2s}}{R Z_{2s}^2}, \quad (1.29)$$

$$\eta_s = \frac{1}{Z_{2s}^2} (4\pi\epsilon_0 \frac{\hbar v}{e^2})^2 = \frac{m_e E_1}{M_1 Z_{2s}^2 R} \quad (1.30)$$

L'expression de la section efficace d'ionisation d'un électron de la couche  $s$  par une particule chargée dans l'approximation de Born devient :

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{0s} \frac{1}{\eta_s} f_s(\eta_s, \theta_s), \quad (1.31)$$

avec

$$\sigma_{0s} = \frac{(2j_2 + 1)4\pi a_0^2 Z_1^2}{Z_{2s}^4}, \quad (1.32)$$

$$f_s(\eta_s, \theta_s) = \int_{W_{min}}^{W_{max}} dW \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2. \quad (1.33)$$

$F_{Ws}(Q)$  est le facteur de forme pour la transition entre les états électroniques pour l'électron de l'atome-cible initialement dans l'état  $s$  et éjecté avec un transfert d'énergie  $\epsilon$ . Les facteurs de forme pour  $s = K, \dots$  ont été calculés par Benka et Kropf en utilisant des fonctions d'ondes hydrogéoïdes.

Toutefois, on peut réécrire la relation 1.31 en utilisant la variable  $\xi_s$  qui mesure le temps caractéristique de l'orbite  $s$  par rapport au temps de collision, et qui permet de séparer le régime de collision lente ( $\xi_s < 1$ ) et rapide ( $\xi_s > 1$ ) :

$$\xi_s = \frac{2n_{2s}\sqrt{\eta_s}}{\theta_s}. \quad (1.34)$$

On obtient alors la forme suivante pour la section efficace d'ionisation :

$$\sigma_s^{PWBA} = \sigma_{0s} \frac{1}{\theta_s} F_s(\xi_s, \theta_s), \quad (1.35)$$

Cependant, les sections efficaces d'ionisation calculées par le modèle PWBA s'écartent de manière relativement importante des sections efficaces expérimentales. Ces écarts peuvent être fortement réduits si on tient compte d'autres effets jusqu'ici ignorés par le modèle PWBA. La déviation coulombienne de la particule incidente due au noyau de l'atome-cible empêche toute pénétration profonde de la particule dans les orbites internes, ce qui réduit évidemment d'autant plus la section efficace d'ionisation de la particule incidente. De plus, dans ce modèle, deux isotopes produiront la même section efficace. Or, l'isotope le plus massif pénètre plus profondément dans les orbites internes et devrait donc produire une plus grande section efficace. Cette correction ainsi que plusieurs autres faites au cours du 20ème siècle ont mené à établir un deuxième modèle théorique : le modèle ECPSSR.

### 1.1.2 ECPSSR

Le deuxième modèle vient de l'abréviation de "Energy-loss Coulomb-repulsion Perturbed-Stationary-State Relativistic theory" [73][74][75]. Ce nom est tiré des corrections ; les corrections d'énergie de liaisons des électrons (PPS), de déviation coulombienne (C), les effets dus au caractère relativiste des électrons (R) et à la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation (E).

### 1.1.3 Correction de liaison

Lors des processus d'ionisation, les états atomiques sont perturbés par le passage des particules chargées incidentes. Dans le régime de basse vitesse, c'est-à-dire pour  $\xi_s \ll 1$ , les états stationnaires perturbés de l'électron de l'atome cible deviennent ceux d'une molécule diatomique avec une distance internucléaire changeante. Quand  $Z_1 \ll Z_2$ , les états électroniques se rapprochent de ceux d'un atome de numéro atomique  $Z_1 + Z_2$  qui peut être décrit par l'approximation de Born. L'énergie de liaison des électrons atomiques augmente alors, ce qui a pour conséquence une diminution de la section efficace d'ionisation. Toutefois, pour les régimes de vitesse intermédiaire ( $\xi_s \approx 1$ ) et élevé ( $\xi_s \gg 1$ ), la contribution principale pour la section efficace d'une orbite  $s$  provient de particules se trouvant dans des zones extérieures à cette orbite. Cette particule chargée va perturber l'état stationnaire et entraîner un effet dit de polarisation qui aura comme conséquence une augmentation de la section efficace. La section efficace corrigée de ces deux effets devient :

$$\sigma_s^{PSS} = \sigma_s^{PWBA} \left( \frac{\xi_s}{\zeta_s}, \zeta_s \theta_s \right) \quad (1.36)$$

avec

$$\zeta_s = 1 + \frac{2Z_1}{Z_2 \theta_s} (g_s - h_s) \quad (1.37)$$

où

$$g_K = \frac{1 + 9\xi + 31\xi^2 + 98\xi^3 + 12\xi^4 + 25\xi^5 + 4.2\xi^6 + 0.515\xi^7}{(1 + \xi)^9}, \quad (1.38)$$

$$g_{L_1} = \frac{1 + 9\xi + 31\xi^2 + 49\xi^3 + 162\xi^4 + 63\xi^5 + 18\xi^6 + 1.97\xi^7}{(1 + \xi)^9}, \quad (1.39)$$

$$g_{L_{2,3}} = \frac{1 + 10\xi + 45\xi^2 + 102\xi^3 + 331\xi^4 + 6.7\xi^5 + 58\xi^6 + 7.8\xi^7 + 0.888\xi^8}{(1 + \xi)^{10}}, \quad (1.40)$$

et

$$h_s = \frac{2n_2}{\theta_s \xi_s^3} I \left( \frac{c_s n_2}{\xi_s} \right) \quad (1.41)$$

avec  $c_K = c_{L_1} = 1.5$  et  $c_{L_2} = c_{L_3} = 1.25$ , et

$$\begin{aligned}
& \frac{2e^{-2x_s}}{x_s^{1.6}} & 3 \leq x_s < 11 \\
I(x_s) = \frac{e^{-2x_s}}{0.031 + 0.21x_s^{\frac{1}{2}} + 0.005x_s - 0.069x_s^{\frac{3}{2}} + 0.324x_s^2} & 0.9 \text{ cm} 0.035 \leq x_s < 3 \quad (1.42) \\
0.75\pi[\ln(\frac{1}{x_s^2}) - 1]b & 0 \leq x_s < 0.035
\end{aligned}$$

#### 1.1.4 Correction de la déviation coulombienne

Pour des particules lentes, l'approximation de Born donne des sections efficaces qui peuvent différer de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux valeurs expérimentales. Cette différence énorme à basse énergie provient du fait que l'approximation de Born néglige l'influence de la répulsion entre les noyaux de la particule incidente et de l'atome cible. Cette répulsion a pour conséquences un ralentissement de la particule incidente et une modification de sa trajectoire. La trajectoire des particules incidentes ne peut donc pas être considérée comme étant en ligne droite mais plutôt hyperbolique. Le coefficient  $C_s(dq_{min})$  est alors défini pour représenter la correction coulombienne :

$$C_s(dq_{min}) = (9 + 2l_2)E_{10+2l_2}(\pi dq_{min}) \quad (1.43)$$

où  $q_{min}$  est défini dans le premier modèle,  $d$  est la demi-distance d'approche dans une collision frontale,

$$d = \frac{\frac{1}{2} \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0}}{\frac{1}{2} \mu v_1^2} \quad (1.44)$$

et  $E_m(y)$  représente l'intégrale exponentielle d'ordre  $m$  qui est évaluée par :

$$E_m(y) = \frac{e^{-y}}{y+m} \left[ 1 + \frac{m}{(y+m)^2} + \frac{m(m-2y)}{(y+m)^4} + \dots \right]. \quad (1.45)$$

La quantité  $dq_{min}$  peut être interprétée comme étant le rapport entre le temps caractéristique de diffusion coulombienne  $\frac{d}{v_1}$  et le temps de transition électronique  $\frac{1}{\omega_{2s}}$ . La section efficace d'ionisation s'écrit alors

$$\sigma_s^{CPSS} = C_s(dq_{min}\zeta_s) \sigma_s^{PWBA} \left( \frac{\xi_s}{\zeta_s}, \zeta_s \theta_s \right). \quad (1.46)$$

### 1.1.5 Correction relativiste

Cette correction tient compte du caractère relativiste des électrons des orbites internes. Ce facteur est particulièrement important pour les électrons des atomes de  $Z_2$  élevé. Le facteur de correction de la masse relativiste de l'électron est défini comme :

$$m_s^R(\xi_s) = \sqrt{1 + 1.1y_s^2} + y_s, \quad (1.47)$$

où

$$y_{K,L_1} = \frac{0.4(\frac{Z_{2s}}{c})^2}{n_s \xi_{K,L_1}}, y_{L_2,L_3} = \frac{0.15(\frac{Z_{2L}}{c})^2}{\xi_{L_2,L_3}} \quad (1.48)$$

La section efficace d'ionisation s'écrit alors

$$\sigma_s^{CPSSR} = C_s(dq_{min}\zeta_s)\sigma_s^{PWBA}(\sqrt{m_s^R\frac{\xi_s}{\zeta_s}}, \zeta_s\theta_s). \quad (1.49)$$

### 1.1.6 Correction de perte d'énergie

La dernière correction de la section efficace d'ionisation dans l'approximation de Born tient compte de la perte d'énergie de la particule incidente lors du processus d'ionisation. Celui-ci est intégré dans la correction coulombienne par la formulation suivante :

$$C_s^E(dq_{min}) = (9 + 2l_2)E_{10+2l_2}(\frac{2\pi dq_{min}}{Z_s(Z_s + 1)}), \quad (1.50)$$

avec

$$Z_s = \sqrt{1 - \frac{4}{M_1\zeta_s\theta_s}(\frac{\xi_s}{\zeta_s})^2}. \quad (1.51)$$

Le terme soustrait représente le rapport de la perte d'énergie de la particule incidente lors de l'ionisation et de son énergie cinétique. La section efficace d'ionisation dans la théorie ECPSSR devient finalement :

$$\sigma_s^{ECPSSR} = C_s^E(dq_{min}\zeta_s)\sigma_s^{PWBA}(\sqrt{m_s^R(\frac{\xi_s}{\zeta_s})\frac{\xi_s}{\zeta_s}}, \zeta_s\theta_s). \quad (1.52)$$

## 1.2 Conclusion

Les deux modèles théoriques des sections efficaces d'ionisation utilisés dans les logiciels de traitement pour l'application de la méthode PIXE sous désormais introduits (PWBA et ECPSSR). Dans la pratique, il n'est pas possible de mesurer la section efficace d'ionisation. Par la contre, la section efficace de production de rayons X est mesurable.



## Chapitre 2

# Mesures de sections efficaces de production de rayons X

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Sections efficaces de production de rayons X . .</b>	<b>296</b>
<b>2.2</b>	<b>Dispositif expérimental . . . . .</b>	<b>297</b>
2.2.1	Expériences préliminaires de la définition de la géométrie . . . . .	299
2.2.2	Calibration de l'énergie des faisceaux de particules $\alpha$	301
2.2.3	Reproductibilité de la mesure de la dose. . . . .	303
2.2.4	Précision de la mesure de la dose . . . . .	305
<b>2.3</b>	<b>Résultats expérimentaux . . . . .</b>	<b>306</b>
2.3.1	Stratégie . . . . .	307
2.3.2	L'aluminium . . . . .	310
2.3.3	Le silicium . . . . .	313
2.3.4	Le fer . . . . .	319
2.3.5	Le cuivre . . . . .	323
2.3.6	L'or . . . . .	328
2.3.7	Le plomb . . . . .	335

---

Le chapitre détaille la stratégie et les résultats expérimentaux des mesures de sections efficaces de production de rayons X réalisées dans le cadre de la thèse pour combler le manque de bases de données pour les faisceaux de particules  $\alpha$  de hautes énergies.

## 2.1 Sections efficaces de production de rayons X

Afin de faciliter les calculs, plusieurs approximations peuvent être faites grâce à l'utilisation de cibles minces. En effet, dans ce cas, l'absorption des rayons X dans l'échantillon-cible et dans l'atmosphère et la perte d'énergie des particules incidentes peuvent être négligées. De surcroît, les effets de matrice sont aussi négligeables [1].

La section efficace de production de rayons X est définie en fonction de la section efficace d'ionisation par :

$$\sigma_X(Z) = \sigma_I(Z)\omega(Z)b_Z \quad (2.1)$$

où  $\sigma_X(Z)$  correspond à la section efficace de production de rayons X de l'élément de numéro atomique  $Z$ ,  $\sigma_I(Z)$  à la section efficace d'ionisation,  $\omega(Z)$  au facteur du fluorescence et  $b_Z$  au rapport d'intensité des sous-raies.

Les hypothèses d'approximation permettent alors de déduire l'intensité des pics caractéristiques d'un élément dans le spectre X obtenue par :

$$Y(Z) = \frac{N_p m_a(Z) N_a \sigma_Z(E_0) \omega_Z b_Z t_Z \epsilon_Z^i(\Omega/4\pi)}{A_Z \cos \alpha} \quad (2.2)$$

où  $Y(Z)$  correspond à l'intensité (l'aire) du pic dans le spectre PIXE pour l'élément de numéro atomique  $Z$ ,  $N_p$  le nombre de particules incidentes corrigé par le temps mort de l'électronique si nécessaire,  $m_a(Z)$  la densité de surface,  $N_a$  le nombre d'Avogadro,  $t_Z$  le facteur de transmission des filtres,  $\epsilon_Z^i$  l'efficacité du détecteur,  $\Omega/4\pi$  l'angle solide de détection,  $A_Z$  la masse atomique et  $\alpha$  l'angle de détection.

Le dernier paramètre important est le facteur de correction  $H$  qui établit la correction nécessaire entre la théorie et l'expérience. Il tient compte des corrections de géométrie, d'énergie des particules incidentes et des bases de données utilisées lors du dépouillement.

$$Y(Z)_{\text{experimental}} = Y(Z)_{\text{théorique}} H \quad (2.3)$$

La section efficace de production de rayons X est dès lors déterminée par l'expression :

$$\sigma_X = \frac{A_Z Y}{N_p m_a(Z) N_a G} \quad (2.4)$$

où  $G$  correspond à un facteur de géométrie global contenant le facteur  $H$ .

## 2.2 Dispositif expérimental

La partie dédiée aux facilités du laboratoire de Liège associées au cyclotron a déjà permis d'introduire la chambre sous vide dédiée aux mesures des sections efficaces. La figure 2.1 reprend le schéma de l'intérieur de la chambre [52].

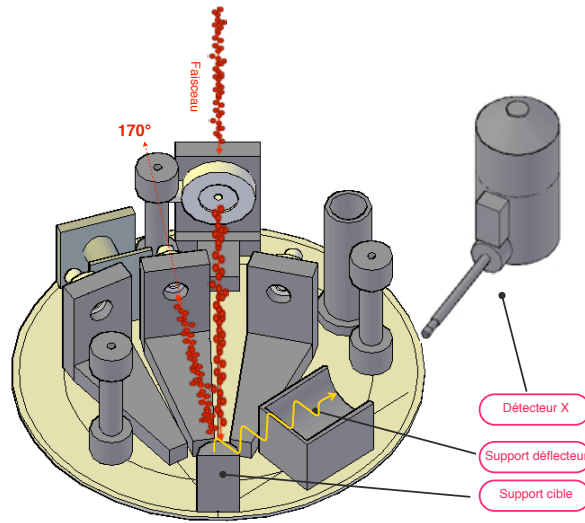


FIGURE 2.1 – Chambre sous vide dédiée aux mesures de sections efficaces.

Il ne reste donc plus qu'à détailler ici, les paramètres expérimentaux utilisés :

- Le déflecteur circulaire a été disposé devant le détecteur X "e2V" à un angle de  $49,5^\circ$ . De plus, un supprimeur d'électron magnétique a été placé entre les deux éléments afin de protéger la fenêtre d'entrée du détecteur. La distance entre l'échantillon et le détecteur est de 8 cm.
- Une cible épaisse de cuivre a été disposée derrière le porte-échantillon pour collecter la charge/dose à la fin du parcours des particules incidentes du faisceau. Pour rappel, elles traversent la cible mince sans y perdre d'énergie.
- Le détecteur PIPS positionné à un angle de  $170^\circ$  a été utilisé pour vérifier la dose de particules reçue par la méthode RBS. En effet, la

possibilité d'un échange de charge dans la cible mince est théoriquement possible. Les particules  $\alpha$ ,  $\text{He}^{2+}$ , chargées positivement deux fois pourraient donc se retrouver seulement chargées une fois positivement ( $\text{He}^+$ ) après avoir traversé la cible et contribuer deux fois moins à la dose. Le nombre de particules ayant réellement interagi avec la cible mince serait donc biaisé.

- Une tension de -200 V a été appliquée au collimateur d'entrée de la chambre afin de repousser les électrons secondaires produits dans la ligne de transport qui pourraient contribuer négativement à la mesure de la dose.

### 2.2.1 Expériences préliminaires de la définition de la géométrie

L'ensemble des cibles minces "Micromatter" disponibles au laboratoire de Liège, reprises dans le tableau 2.1, a été irradié de manière à tenter de définir un facteur de géométrie  $G$  et de comprendre et vérifier le comportement du nouveau dispositif expérimental que constitue la chambre [76][77]. Les cibles ( $11 \leq Z \leq 82$ ) sont certifiées comme ayant une épaisseur proche de  $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \pm 5\%$

Elément	Epaisseur ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Elément	Epaisseur ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )
NaCl	50,2	Cu	52,1
Mg	45,1	ZnTe	52,1
Al	42,8	GaP	46,1
SiO	51,2	CdSe	58,9
GaP	40,6	CsBr	46,3
GaAs	49,1	RbI	51,8
CuS <sub>x</sub>	40,9/17,1	Ag	49
KCl	49,8	AgHg	21,5/22,2
TlCl	46,9	In	49,5
CaF	44,8	Sn	48,9
ScF <sub>3</sub>	49,6	SrF <sub>2</sub>	49,9
Ti	44,7	Sb	48,4
V	48,2	BaF <sub>2</sub>	45,5
Cr	44,4	Pt	38,6
Mn	49,3	Au	47,5
Fe	49,8	Pb	50,1
Co	50,1	Bi	46,6
Ni	58		

TABLE 2.1 – Cibles minces "Micromatter".

Le graphique 2.2 reprend l'ensemble des facteurs de correction  $H$  calculés de manière à obtenir la concentration réelle des cibles minces "Micromatter" dans le logiciel de dépouillement "GupixWin" en fonction de l'énergie des rayons X issus des raies K, L, et M.

Les discussions de la partie de la thèse dédiée aux calibrations des détecteurs, suggèrent que le facteur  $H$  devrait être constant pour l'ensemble des éléments si la définition du détecteur et des filtres (la fenêtre d'entrée du détecteur dans le cas présent) était parfaitement connue.

Les importantes fluctuations à basse énergie sont dues à l'imprécision de la

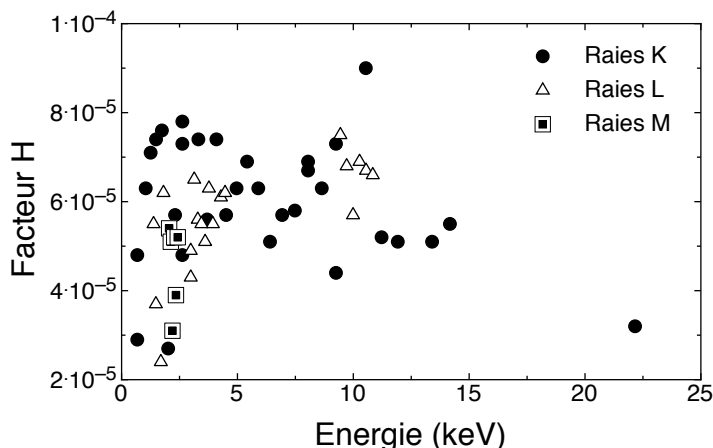


FIGURE 2.2 – Graphique du facteur de correction  $H$  calculé de manière à obtenir la concentration réelle dans “GupixWin” en fonction de l’énergie des rayons X issus des raies K, L, et M.

définition du filtre.

L’atténuation des rayons X de hautes énergies est négligeable dans la fenêtre d’entrée du détecteur pour des modifications limitées de sa définition. Les fluctuations observées sont donc causées par la définition des paramètres du détecteur. La couche morte du cristal ( $1E-6$  cm), l’épaisseur du cristal (0,45 cm), l’épaisseur de la fenêtre d’entrée, l’épaisseur de la couche métallique au contact du cristal ( $1E-6$  cm) et la distance de l’échantillon au cristal (définie erronément comme nulle) sont autant de paramètres qu’il faudrait corriger.

Les expériences décrites au chapitre dédié à la calibration des détecteur X réalisées en 2011 proposent un début de correction. En attendant, il a été décidé de s’affranchir de cette lourde et longue calibration en définissant un facteur de géométrie relatif discuté dans la section suivante. Ce facteur doit être calculé avec précision pour toutes les cibles minces dont les sections efficaces de production de rayons X seront mesurées.

### 2.2.2 Calibration de l'énergie des faisceaux de particules $\alpha$

La calibration d'un cyclotron ne peut pas se faire simplement à l'aide d'une corrélation linéaire établie par deux ou trois réactions nucléaires dans une gamme d'énergie des particules incidentes aussi large, de 6 à 12 MeV avec des particules  $\alpha$ . L'utilisation d'une corrélation linéaire établie entre la tension du terminal et l'énergie du faisceau pour les accélérateurs linéaires, comme à Dresden, ne peut être appliquée ici.

En effet, dans le cas des cyclotrons, la variation de la fréquence d'inversion de la haute tension des défecteurs au sein de l'accélérateur est à la base de la variation d'énergie du faisceau extrait. Une corrélation entre l'énergie des particules incidentes extraites jusqu'à la chambre sous vide et cette fréquence doit être établie, pour chaque type de particules. Cependant, les réactions nucléaires résonantes nécessaires ne permettent pas de couvrir la gamme d'énergie d'intérêt de 6 à 12 MeV pour les particules  $\alpha$ . La modification de la charge n'est pas possible non plus, puisque l'insertion d'un stripper dans le cyclotron est impossible.

Dans la pratique, la possibilité d'employer la méthode RBS à l'intérieur de la chambre sous vide a été choisie pour s'affranchir de ces problèmes. Les particules rétro-diffusées par la cible disposée sur le porte-échantillon ont été collectées par le détecteur PIPS positionné à  $170^\circ$ .

Dans un premier temps, le spectre RBS a été calibré à partir d'une cible mince d'Au, déposée sur un substrat d'Al avec une couche d'accroche en Cr, irradiée par un faisceau de protons de 3,12 MeV et d'une source d'  $^{241}\text{Am}$ . Le facteur cinématique de l'or dans cette configuration est de 0,9799 dans le cas de protons incidents. La position du pic correspondant à l'or est donc de  $3120.0,9799 = 3057,29$  keV. Comme le montre la figure 2.3, le spectre obtenu ne contient qu'une faible statistique pour le pic de la source. Celle-ci est en effet peu active. De plus, bien que la source émette trois particules  $\alpha$  d'énergies différentes, la résolution n'étant pas suffisante, le spectre ne contient qu'un seul pic correspondant à une énergie moyenne. Les énergies de 5487, 5443 et 5486 keV sont approchées par une valeur moyenne de 5472 keV.

Une fois la calibration effectuée, la cible mince d'or a été irradiée par les différents faisceaux de particules  $\alpha$  dont l'énergie était à définir. Il est

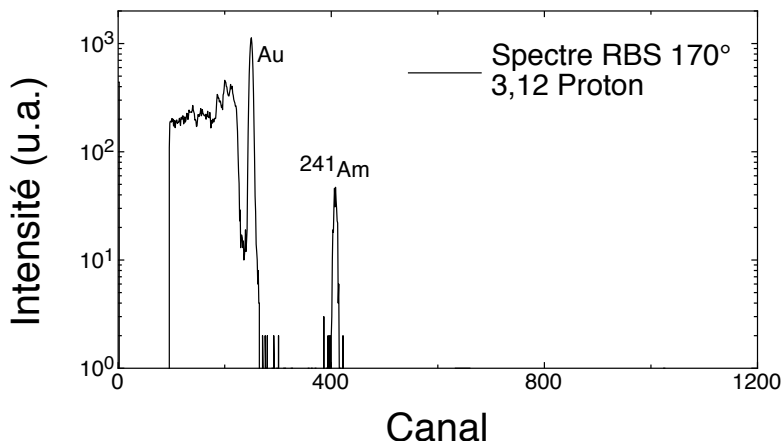


FIGURE 2.3 – Spectre RBS de la cible Au/Cr/Si à 3,12 MeV proton et de la source d' $^{241}\text{Am}$ .

important de souligner que le facteur cinématique est changé et vaut 0,9225 dans la configuration présente. Le facteur cinématique est en effet dépendant de l'angle de rétro-diffusion mais également du type de particules envisagées.

Le tableau 2.2 reprend les résultats obtenus lors du traitement des différents spectres RBS. La calibration de l'énergie des faisceaux de particules  $\alpha$  par rapport à la fréquence de la haute tension est donnée par la relation  $Y = aX^2 + bX + C$ . Les valeurs des paramètres sont de :  $a = -9,2\text{E-}8 \pm 1,25\text{E-}8$ ,  $b = 2,85\text{E-}3 \pm 0,22\text{E-}3$  et  $C = 6,9 \pm 0,96$ .

La reproductibilité des faisceaux est tout de même vérifiée en temps réel grâce à la mesure du champ magnétique nécessaire à défléchir les particules au niveau du deuxième aimant d'analyses "Berkeley" de la ligne 8 par l'intermédiaire d'une sonde RMN.

Une autre solution introduite dans la partie dédiée aux lignes serait l'utilisation d'un dispositif de temps de vol TOF disposé à la fin de la chambre sous vide.



Fréquence (MHz)	Canal	Energie (keV)
21	419	6210
22,355	457,5	6883
23,44	519	7707
24,3	552	8385
25,3	591	9150
26,2	624	9870
26,9	658	10665
27,6	692	11525

TABLE 2.2 – Calibration de l'énergie des faisceaux de particules  $\alpha$  par rapport à la fréquence de la haute tension et du canal sur le spectre RBS de l'or à 170°.

### 2.2.3 Reproductibilité de la mesure de la dose.

La reproductibilité de la mesure de la dose a été vérifiée en irradiant la cible mince de Bi avec un faisceau de protons de 3,12 MeV en suivant trois étapes.

La première étape a consisté à définir le facteur de correction  $H$  afin d'obtenir la concentration correcte de 46,6  $\mu g/cm^2$  lors du dépouillement. Pour ce faire, la raie  $M_\alpha$  de 2,423 keV a été préférée à la raie  $L_\alpha$  de 10,84 keV pour augmenter la statistique déjà faible (quelques milliers au lieu de 150 coups). La raie  $M_\alpha$  a d'ailleurs également été choisie pour les deux autres étapes. Le facteur est déduit à  $H = 4,2E-5$ . La deuxième étape est basée sur la réalisation de dix mesures identiques à des doses de 1200 coups sur l'intégrateur de courant. Un coup équivalant à  $10^{-10}$  C. Tandis que la troisième étape étudie le comportement du faisceau pour une dose doublée de 2400 coups.

Le tableau 2.3 reprend les résultats obtenus pour les deux dernières étapes. La dose comportant l'astérisque présente le onzième résultat qui n'est que le résultat obtenu avec la double dose. Les erreurs publiées sont calculées en sommant les erreurs sur la dose, la statistique et le fit du logiciel. La moyenne des concentrations calculées est de 45,5  $\mu g/cm^2$  avec un écart type de 2%.

Le graphique 2.4 reprend les valeurs des concentrations et les bornes de

<b>Bi</b>	Dose (coups)	Aire (coups)	Erreur (%)	Concentration (ng/cm <sup>2</sup> )
	1200	3390	6	46200
	1200	3270	6	44600
	1200	3350	6	45800
	1200	3420	6	46650
	1200	3250	6	44400
	1200	3370	6	46000
	1200	3380	6	46150
	1200	3440	6	46900
	1200	3250	6	44350
	1200	3270	6	44600
	2400*	6640/2	4	45300
<b>Moyenne</b>				45500
<b>Ecart type</b>				2%

TABLE 2.3 – Récapitulatif des résultats de la vérification de la reproductibilité de la dose sur la cible mince de Bi.

la moyenne des concentrations calculées pour la cible mince de Bi, corrigées du facteur  $H$ , pour le faisceau de protons de 3,12 MeV. Il est important de signaler que les deux bornes restent à l'intérieur des barres d'erreurs des concentrations. La mesure de dose de la chambre sous vide dédiée aux mesures de sections efficaces de production de rayons X est donc reproductible pour les expériences réalisées par un couple énergie/particule identique du faisceau incident.

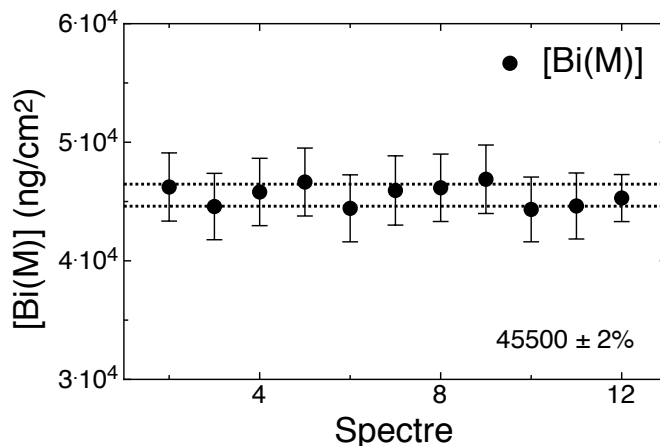


FIGURE 2.4 – Concentrations calculées (et moyenne) pour la cible mince de Bi, corrigées du facteur H, pour le faisceau de protons de 3,12 MeV.

#### 2.2.4 Précision de la mesure de la dose

La reproductibilité de la mesure de la dose a été vérifiée, cependant, la précision ne l'a pas été. Il faut bien faire la distinction entre les deux notions. Les expériences réalisées avec un même faisceau jouissent d'une mesure de la dose reproductible, mais il s'agit de vérifier que la dose reçue par l'échantillon est la même pour des faisceaux de différentes énergies pour un preset de dose identique. Même si cette information ne nous permet pas de juger réellement de la précision des mesures, elle permet au moins d'avoir des mesures de dose comparables entre elles pour les différents faisceaux.

Les premiers résultats des sections efficaces de production de rayons X obtenus sur l'Al sont repris dans le tableau 2.4. Ils montrent un comportement opposé à la théorie. La section efficace est censée augmenter avec l'énergie des particules incidentes, mais l'expérience montre le contraire. Le rapport entre les sections efficaces mesurées et théoriques a été calculé de manière à trouver une corrélation avec l'énergie. Le graphique 2.5 met en évidence une corrélation linéaire  $Y = aX + b$  avec comme paramètres  $a = -1,89\text{E-}4 \pm 0,05\text{E-}4$ , et  $b = 2,15 \pm 0,04$ .

La solution a été de modifier légèrement le dispositif expérimental. Une gaine thermo-rétractable isolante a été disposée à l'intérieur du détecteur annulaire pour éviter les problèmes de masses et les pertes de charges.

Energie (keV)	Section efficace mesurée (barns)	Section efficace théorique (barns)	Rapport	Dose (coups)
6210	3915	3977,8	0,985	20000
6885	3545	4229,8	0,84	20000
7710	3100	4470,6	0,69	20000
8650	2420	4673,6	0,52	20000

TABLE 2.4 – Comparaison des sections efficaces mesurées et théoriques pour l'aluminium avec des faisceaux  $\alpha$  de haute énergie.

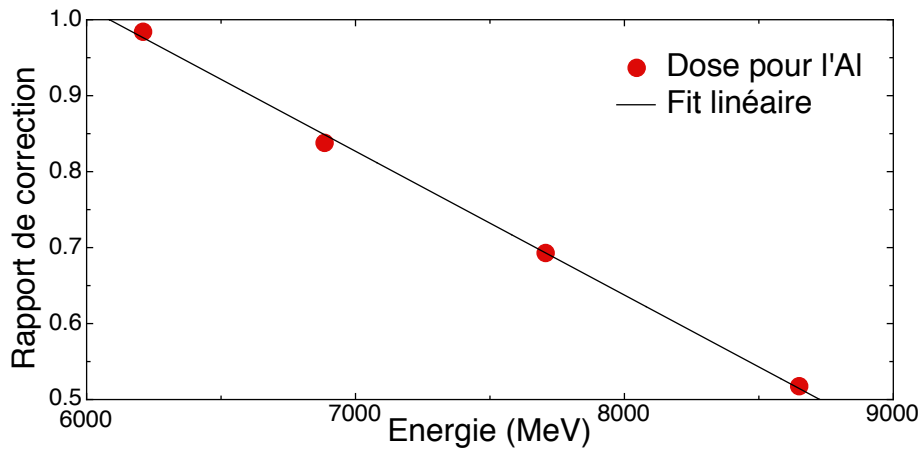


FIGURE 2.5 – Corrélation linéaire entre le rapport des sections efficaces mesurées et théoriques de l'Al pour les faisceaux d' $\alpha$  de haute énergie.

## 2.3 Résultats expérimentaux

Les sections efficaces de production de rayons X ont été calculées sur plusieurs éléments représentatifs de l'ensemble du tableau périodique avec les faisceaux de particules  $\alpha$  de 6 à 12 MeV pour leurs raies K ou L :

- Al K ;
- Si K ;
- Fe K ;
- Cu K ;
- Au L ;

- Pb L.

Préalablement aux résultats, la stratégie mise en oeuvre est détaillée.

### 2.3.1 Stratégie

La mesure de la section efficace de production de rayons X d'un élément  $Z$  est calculée à partir d'une stratégie basée sur la caractérisation relative de la géométrie de la chambre sous vide préalable avec un faisceau de protons de 3,12 MeV. Par contre, la géométrie de la chambre sous vide s'est montrée difficile à calculer précisément pour chaque élément et la dose de courant n'est pas vérifiée en tant qu'absolue. La géométrie ne change pas et la mesure de dose est reproductible pour les différents faisceaux. La stratégie relative s'impose donc.

Le choix du faisceau de référence s'est porté sur le faisceau de 3,12 MeV. En effet, la précision des sections efficaces de rayons X dans le cas des faisceaux de protons est excellente et les bases de données à cette énergie sont donc fiables.

Un facteur de correction de la géométrie est alors calculé en se servant de la formule 2.2. L'intensité  $Y(Z)$  est calculée à partir de l'aire du pic caractéristique de l'élément  $Z$  du spectre X, obtenu lors de l'irradiation de la cible mince d'élément  $Z$  par le faisceau de protons, par le logiciel "GupixWin". L'autre membre de l'égalité, pour une dose connue, ne comporte plus qu'un facteur de géométrie  $G$ . Celle-ci est inconnue si la section efficace de production de référence, issue de la base de donnée du logiciel, est introduite. Le facteur de géométrie  $\frac{t_Z \epsilon_Z^i(\Omega/4\pi)}{C_{\text{osa}}}$ , unique pour l'élément  $Z$ , est alors déduit.

Dans le cas des faisceaux de particules  $\alpha$ , la stratégie est inversée. Elle consiste à utiliser le facteur de géométrie dans la formule 2.4. L'intensité  $Y(Z)$  est calculée à partir de l'aire du pic caractéristique de l'élément  $Z$  du spectre X pour en déduire la section efficace de production de rayons X.

Les mêmes expériences ont été réalisées jusqu'à une dizaine de fois pour la même cible avec les différents faisceaux pour améliorer la précision des mesures. De ce fait, un traitement statistique a été réalisé afin de calculer les sections efficaces de production de rayons X moyennes et les erreurs associées.

Chaque résultat de l'expérience est considéré comme une donnée  $X$  de

telle manière que :

$$X \pm dX \quad (2.5)$$

$$dX(\%) = (\Delta(stat.\%) + \Delta(fit\%)) \quad (2.6)$$

L'erreur statistique est calculée par le logiciel "GupixWin" à partir de :

$$N = P + O + B; \Delta(stat.\%) = \sqrt{(N + B)} = \frac{100\sqrt{P + O + 2B}}{P} \quad (2.7)$$

où  $O$  correspond à l'air du pic de recouvrement d'un autre élément,  $B$  le bruit de fond du pic,  $P$  l'aire nette sous le pic et  $N$  l'aire totale sous le pic.

L'erreur de l'ajustement est, quant à elle, estimée par la méthode des moindres carrés avec un ajustement linéaire.

De ce fait, la section efficace de production de rayons X moyenne pour un faisceau particulier est calculée à partir de :

$$\bar{X} = \frac{\sum_{i=1}^n X_i}{n} \quad (2.8)$$

$$\sigma^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2 \quad (2.9)$$

$$\sigma_{\bar{X}} = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad (2.10)$$

Il faut ajouter à chaque mesure l'erreur sur la moyenne du facteur de géométrie calculée avec le faisceau de protons, dénommée  $\Delta(Géom.)$ .

D'autre part, la gamme d'énergie des faisceaux incidentes de 6210 à 11525 keV couvre 273 canaux sur le spectre RBS. La précision sur la position du pic de l'or, étant d'un canal, équivaut donc à  $\pm 19,5$  keV. En tenant compte de cette donnée, la variation  $\Delta(E)$  des sections efficaces de production de rayons X théorique entre les énergies  $(E-20 \text{ keV})$  et  $(E+20 \text{ keV})$  a été calculée à partir des sections efficaces théoriques pour l'ensemble des éléments et des faisceaux incidents.

L'erreur associée est alors calculée à partir de :

$$\bar{X} \pm (\sigma + \Delta(E) + \Delta(Géom.)) \quad (2.11)$$

## Comparaison des sections efficaces de production de rayons X

Afin de vérifier la validité des modèles théoriques, ECPSSR et PWBA, les sections efficaces de production de rayons X mesurées dans le cadre de la thèse sont comparées aux valeurs théoriques calculées par le logiciel “ISICS” [78][79]. De surcroît, le logiciel “GupixWin” [19] possède également ses propres bases de données accessibles via le logiciel “GUCSA”. Les sections efficaces théoriques et de référence calculées à partir de cette base de données sont également comparées aux résultats expérimentaux. De plus, un ajustement à partir d’un polynôme d’ordre 2 est calculé avec les valeurs expérimentales.

La section efficace d’ionisation expérimentale est ensuite calculée à partir des rendements de fluorescence publiés par H. Paul (1993) [16] et non ceux publiés par M.O. Krause (1979) [15].

Des approximations polynomiales sont en cours de réalisation pour les sections efficaces d’ionisation induite avec les particules  $\alpha$  et les protons [80].

## Ionisations multiples

L’existence du phénomène d’ionisations multiples dans les cibles peut modifier la production de rayons X et mener à une surévaluation des sections efficaces de production de rayons X [81]. Les corrections nécessaires ont été estimées par R.H. McKnight *et al.* [82] à partir des résultats expérimentaux de Knudson *et al.* [83] (en utilisant les facteurs de fluorescence cités par Olsen *et al.* [84] et Hansen *et al.* [85]).

Ces corrections diminuent les valeurs des sections efficaces d’ionisation de l’aluminium de 5% avec des particules  $\alpha$  de 1 MeV. A 5 MeV, et au-delà, aucune correction n’est nécessaire. La conclusion s’applique aussi aux cibles de numéro atomique supérieur.

## Activité résiduelle

Un second effet a été pris en compte lors des mesures.

Suite aux réactions  $(\alpha, pXn)$  et  $(\alpha, Xn)$  dans les cibles, il y a formation d’isotopes de numéro atomique  $Z+1$  et  $Z+2$ . Les isotopes instables se désintègrent principalement par capture électronique, émission d’un  $\beta^+$  ou d’une particule  $\alpha$ , mais également par l’émission de rayons X (suite à l’ionisation des couches atomiques). L’activité résiduelle est issue de ces phénomènes. L’émission résiduelle de rayons X pourrait être détectée et ainsi fausser les résultats des mesures de sections efficaces de production de rayons X. Il faut

donc tenir compte de ces effets lors des mesures.

La dépendance de l'émission de rayons X résiduelle dans le cas du plomb avec des particules  $\alpha$  de 60 MeV a été publiée par G.Terwagne [86].

La vérification de l'existence d'une activité résiduelle des cibles minces, lors des mesures, a été réalisée en observant la présence (ou non) de rayons X caractéristiques des isotopes instables ( $Z+1$  et  $Z+2$ ) dans le spectre X. En pratique, aucune contribution quantifiable n'a été observée.

### 2.3.2 L'aluminium

La cible "Micromatter" de  $42,8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'aluminium déposé sur un filtre ultra mince de "Nuclepore" de 37 mm de diamètre a été irradiée.

Le tableau 2.5 et le graphique 2.6 reprennent la comparaison de l'ensemble des sections efficaces pour la raie K de l'Al.

Energie (keV)	6210	6885	7710	9150
GU CSA théorique (barns)	3977,8	4229,8	4470,6	4755,2
GU CSA référence (barns)	4224,6	4498,3	4750,4	5049,2
ECPSSR (barns)	4004	4258,1	4499,8	4785,4
PWBA (barns)	3699,6	3910,4	4112,3	4360,4
La thèse (barns)	3980	4230	4335	4700
Erreur sur l'énergie (%)	0,2	0,15	0,1	0,1
Erreur sur la mesure (%)	3,8	1,35	2	5
Erreur totale (%)	4	1,5	2,1	5,1
Erreur totale (barns)	160	66	80	230
W	0,039	0,039	0,039	0,039
Section efficace d'ionisation (barns)	102000	108500	111200	120600

TABLE 2.5 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour l'Al.

Les résultats expérimentaux mettent en avant le modèle ECPSSR, même si à haute énergie ils dévient, de par l'erreur importante. Le modèle PWBA ne semble donc pas rendre compte de la physique en jeu. Il en va de même pour les sections efficaces de référence qui surévaluent les données pour toutes les énergies.



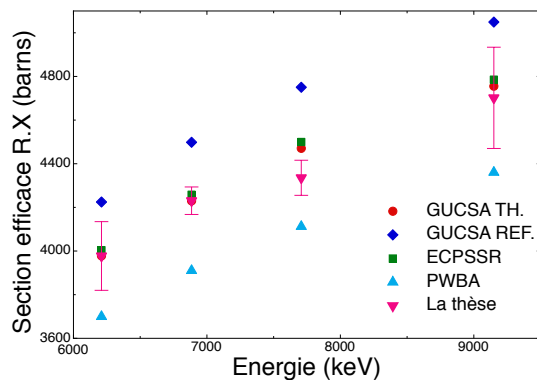


FIGURE 2.6 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour l'Al.

Le tableau 2.6 reprend, quant à lui, l'ensemble des données associées au traitement des spectres des expériences réalisées sur l'Al. Les colonnes des moyennes reprennent le facteur de géométrie moyen dans le cas des protons, et la section efficace moyenne dans le cas des particules  $\alpha$ . Les valeurs entre parenthèses reprennent l'erreur  $\sigma$  associée à la moyenne notée à la cellule au-dessus.

Al K	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	3120	Proton	1,5	9,36E+24	1,946E+05	320	1,72E-29	1,76E-29	1267,9	
	3120	Proton	1,5	9,36E+24	1,940E+05	320	1,71E-29	(2,14E-31)	1267,9	
	3120	Proton	1,5	9,36E+24	1,977E+05	320	1,74E-29		1267,9	
	3120	Proton	1,5	9,36E+24	2,025E+05	330	1,79E-29		1267,9	
	3120	Proton	1,5	9,36E+24	2,066E+05	330	1,82E-29		1267,9	
	9150	Alpha	1,5	4,68E+24	3,804E+05	570	1,76E-41		4850	4470
	9150	Alpha	1,5	4,68E+24	3,460E+05	560	1,76E-41		4400	(160)
	9150	Alpha	1,5	4,68E+24	3,405E+05	590	1,76E-41		4340	
	9150	Alpha	2,0	6,24E+24	4,533E+05	670	1,76E-41		4350	
	9150	Alpha	2,0	6,24E+24	4,479E+05	660	1,76E-41		4280	
	9150	Alpha	2,0	6,24E+24	4,746E+05	650	1,76E-41		4530	
	9150	Alpha	2,0	6,24E+24	4,772E+05	650	1,76E-41		4560	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	5,514E+05	570	1,82E-29	2,10E-29	1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	5,122E+05	580	1,69E-29	(1,03E-31)	1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,326E+05	600	2,09E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,240E+05	610	2,06E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,323E+05	610	2,09E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,355E+05	610	2,10E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,356E+05	610	2,10E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,393E+05	610	2,11E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,505E+05	610	2,15E-29		1267,9	
	3120	Proton	4,0	2,50E+13	6,304E+05	610	2,08E-29		1267,9	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,681E+05	980	2,10E-29		3865	3980
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,481E+05	980	2,10E-29		3785	(130)
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,651E+05	980	2,10E-29		3850	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	1,050E+06	930	2,10E-29		4195	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	1,023E+06	920	2,10E-29		4085	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,979E+05	950	2,10E-29		3985	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	1,012E+06	930	2,10E-29		4040	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,960E+05	940	2,10E-29		3980	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	1,003E+06	940	2,10E-29		4005	
	6210	Alpha	4,0	1,25E+13	9,963E+05	925	2,10E-29		3980	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,087E+06	1030	2,10E-29		4340	4230
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,067E+06	1050	2,10E-29		4260	(35)
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,062E+06	1050	2,10E-29		4240	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,082E+06	1050	2,10E-29		4320	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,074E+06	1050	2,10E-29		4290	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,075E+06	1040	2,10E-29		4290	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,017E+06	1020	2,10E-29		4060	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,065E+06	1030	2,10E-29		4250	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,003E+06	1000	2,10E-29		4000	
	6885	Alpha	4,0	1,25E+13	1,063E+06	1030	2,10E-29		4250	
	7710	Alpha	2,0	6,11E+12	5,751E+05	780	2,10E-29		4690	4700
	7710	Alpha	4,0	1,25E+13	1,176E+06	1140	2,10E-29		4690	(60)
	7710	Alpha	4,0	1,25E+13	1,224E+06	1100	2,10E-29		4885	
	7710	Alpha	4,0	1,25E+13	1,133E+06	1090	2,10E-29		4525	
	7710	Alpha	4,0	1,25E+13	1,171E+06	1090	2,10E-29		4680	
	7710	Alpha	4,0	1,25E+13	1,185E+06	1090	2,10E-29		4730	

TABLE 2.6 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l'Al.

### 2.3.3 Le silicium

La cible “Micromatter” de  $52,2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  d’oxyde de silicium déposé sur un filtre ultra mince de “Nuclepore” de 37 mm de diamètre a été irradiée.

Le tableau 2.7 et le graphique 2.7 reprennent la comparaison de l’ensemble des sections efficaces pour la raie K du Si.

Energie	(keV)	6210	6885	7710	8385
Empirique (Paul)	(barns)	3365,782	3645,396	3942,607	4149,89
GUCSA théorique	(barns)	3285,2	3555,1	3827	4009,3
GUCSA référence	(barns)	3389	3674,1	3962,3	4154,1
PWBA	(barns)	3095,7	3312,4	3533,9	3684,9
ECPSSR	(barns)	3258	3525,7	3795,5	3976,4
La thèse	(barns)	3280	3730	3970	4070
Erreur sur l’énergie	(%)	0,2	0,2	0,2	0,1
Erreur sur la mesure	(%)	3,3	3,4	2,8	3,5
Erreur totale	(%)	3,5	3,6	3	3,6
Erreur totale	(barns)	103	125	110	145
W		0,05	0,05	0,05	0,05
Section efficace d’ionisation	(barns)	65580	74560	79355	81340
Energie	(keV)	9150	9870	10665	11525
Empirique (Paul)	(barns)	4343,38	4486,358	4600,15	4671,17
GUCSA théorique	(barns)	4176,9	4330,5	4413,7	4503,6
GUCSA référence	(barns)	4328,3	4458,2	4571,7	4669,5
PWBA	(barns)	3826,1	3934,7	4031,4	4112,8
ECPSSR	(barns)	4142,7	4268,3	4377,6	4467
La thèse	(barns)	4170	4375	4395	4450
Erreur sur l’énergie	(%)	0,1	0,1	0,05	0,05
Erreur sur la mesure	(%)	2,1	2,64	2,3	2,3
Erreur totale	(%)	2,2	2,7	2,35	2,35
Erreur totale	(barns)	90	115	100	100
W		0,05	0,05	0,05	0,05
Section efficace d’ionisation	(barns)	83380	87485	87885	89060

TABLE 2.7 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour le Si.

Dans le cas du Si, les données expérimentales sont en bon accord avec le modèle ECPSSR aux erreurs de mesure près. L’écart est cependant légèrement plus important aux basses énergies. Le modèle PWBA sous-évalue tous les résultats. Sauf pour deux énergies, les résultats de la thèse sont plus en accord avec le modèle ECPSSR que les références de la base de donnée de GupixWin. Les sections efficaces théoriques de la base de données sont, elles, en excellent accord.

Les paramètres de l’ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = -3\text{E-}5 \pm 0,3\text{E-}5 ; b = 0,7 \pm 0,02.$$

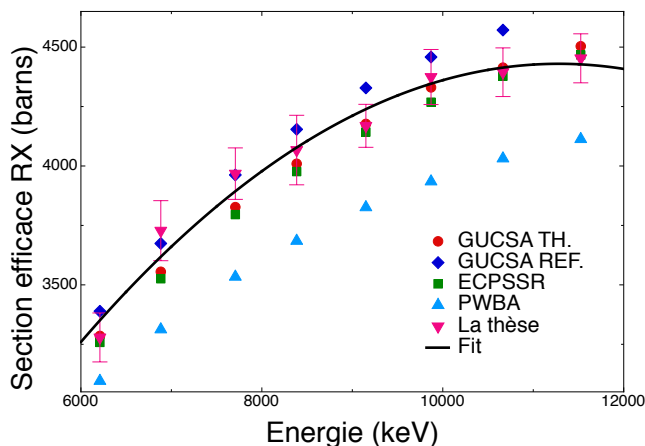


FIGURE 2.7 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour le Si.

Les sections efficaces de production de rayons X du silicium ont de grandes portées scientifiques.

Un exemple concret, est l'utilisation d'une source de  $^{244}\text{Cm}$  dans la mission "Mars Pathfinder" lancée en décembre 1996. Le robot motorisé déposé à la surface de la planète intégrait un spectromètre "Alpha Proton X-Ray" avec une source de Cm à la fois comme générateur de particules  $\alpha$  pour réaliser des analyses PIXE et de rayons X pour réaliser des analyses XRF du sol martien [87].

Les particules  $\alpha$  émises ont une énergie de 5,81 MeV. Il est dès lors envisageable d'extrapoler les résultats expérimentaux pour une énergie relativement proche de notre gamme d'analyses. L'ajustement donne une section efficace de production de rayons X de  $3280 \pm 7\%$  barns pour l'énergie de 5810 keV.

Un deuxième exemple est l'utilisation des rayons X émis par la fenêtre d'extraction à l'air d'un faisceau de particules accélérées pour déduire la dose de particules qui a traversé la fenêtre et, *de facto*, déduire la dose reçue par l'échantillon-cible.

En effet, le C2RMF utilise un détecteur SDD positionné dans le nez d'extraction pour collecter les rayons X émis par la fenêtre d'extraction [64]. La connaissance précise des sections efficaces permet d'améliorer la reproductibilité de la mesure de la dose pour des faisceaux incidents d'énergie différente. Un faisceau de moindre énergie, produira moins de rayons X qu'un faisceau plus énergétique pour le même nombre de particules incidentes. Un système

similaire est à l'étude à l'IPNAS afin de pouvoir tirer profit des couples énergie/particule de faisceaux de haute énergie-haute résolution en PIXE et en RBS avec les meilleurs paramètres.

Le tableau 2.8 reprend, quant à lui, l'ensemble des données associées au traitement des spectres des expériences réalisées sur le Si.

SI K	Energie (MeV)	Particule	Dose ( $\mu C$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,82E+05	3,64E-29	3,17E-29	1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,69E+05	3,38E-29	(7,4E-31)	1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,80E+05	3,60E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,82E+05	3,65E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,82E+05	3,65E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,38E+05	2,76E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,36E+05	2,71E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,34E+05	2,69E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,56E+05	3,12E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,53E+05	3,07E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,51E+05	3,02E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,47E+05	2,93E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,48E+05	2,95E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,59E+05	3,18E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,57E+05	3,14E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,56E+05	3,12E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,61E+05	3,22E-29		1145,8	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	1,63E+05	3,26E-29		1145,8	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	231525	3,17E-29		3350	3280
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	221769	3,17E-29		3200	(35)
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	217656	3,17E-29		3140	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	226263	3,17E-29		3270	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	243861	3,17E-29		3520	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	229615	3,17E-29		3320	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	227301	3,17E-29		3280	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	224484	3,17E-29		3240	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	234853	3,17E-29		3390	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	221192	3,17E-29		3200	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	223056	3,17E-29		3220	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	221790	3,17E-29		3200	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	267827	3,17E-29		3870	3730
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	264164	3,17E-29		3820	(50)
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	245681	3,17E-29		3550	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	268036	3,17E-29		3870	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	271555	3,17E-29		3920	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	261025	3,17E-29		3770	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	243605	3,17E-29		3520	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	242644	3,17E-29		3510	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	259307	3,17E-29		3750	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	266074	3,17E-29		3840	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	255296	3,17E-29		3690	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	251114	3,17E-29		3630	

Si K	Energie (MeV)	Particule	Dose ( $\mu$ C)	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	273017	3,17E-29		3940	3870
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	261260	3,17E-29		3770	(30)
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	279306	3,17E-29		4040	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	272889	3,17E-29		3940	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	274088	3,17E-29		3960	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	277727	3,17E-29		4010	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	272508	3,17E-29		3940	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	272622	3,17E-29		3940	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	271,199,73	3,17E-29		3920	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	275322	3,17E-29		3980	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	278014	3,17E-29		4020	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	287620	3,17E-29		4160	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	284330	3,17E-29		4110	4065
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	273949	3,17E-29		3960	(70)
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	279159	3,17E-29		4030	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	284665	3,17E-29		4110	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	280355	3,17E-29		4050	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	291306	3,17E-29		4210	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	286044	3,17E-29		4130	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	288474	3,17E-29		4170	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	283297	3,17E-29		4090	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	262152	3,17E-29		3790	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	280142	3,17E-29		4050	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	284123	3,17E-29		4100	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	286119	3,17E-29		4130	4170
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	287416	3,17E-29		4150	(10)
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	291223	3,17E-29		4210	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	286992	3,17E-29		4150	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	286218	3,17E-29		4140	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	291545	3,17E-29		4210	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	286,556	3,17E-29		4140	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	287214	3,17E-29		4150	
	9,15	Alpha	1	3,12E+12	293681	3,17E-29		4240	4375
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	306492	3,17E-29		4430	(35)
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	305973	3,17E-29		4420	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	305278	3,17E-29		4410	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	309825	3,17E-29		4480	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	304813	3,17E-29		4400	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	307808	3,17E-29		4450	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	290206	3,17E-29		4190	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	304720	3,17E-29		4400	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	300244	3,17E-29		4340	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	294992	3,17E-29		4260	
	9,87	Alpha	1	3,12E+12	300033	3,17E-29		4330	

Si K	Energie (MeV)	Particule	Dose ( $\mu$ C)	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	307231	3,17E-29		4440	4395
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	308792	3,17E-29		4460	(20)
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	307595	3,17E-29		4440	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	311647	3,17E-29		4500	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	300620	3,17E-29		4340	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	304718	3,17E-29		4400	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	299960	3,17E-29		4330	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	289084	3,17E-29		4180	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	299339	3,17E-29		4320	
	10,665	Alpha	1	3,12E+12	297522	3,17E-29		4300	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	304290	3,17E-29		4400	4450
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	300771	3,17E-29		4350	(20)
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	310691	3,17E-29		4490	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	304930	3,17E-29		4410	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	303401	3,17E-29		4380	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	307,501,69	3,17E-29		4440	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	311420	3,17E-29		4500	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	307609	3,17E-29		4440	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	315,670,93	3,17E-29		4560	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	314011	3,17E-29		4540	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	309595	3,17E-29		4470	
	11,525	Alpha	1	3,12E+12	308571	3,17E-29		4460	

TABLE 2.8 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Si.



### 2.3.4 Le fer

La cible “Micromatter” de  $49,8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de fer déposé sur un filtre ultra mince de “Nuclepore” de 25 mm de diamètre a été irradiée.

Le tableau 2.9 et le graphique 2.8 reprennent la comparaison de l’ensemble des sections efficaces pour la raie K du Fe.

Energie	(keV)	6210	6885	7710	8385
GUCSA théorique	(barns)	183,82	234,59	301,89	360,41
GUCSA référence	(barns)	167,28	213,82	276,39	331,67
ECPSSR	(barns)	176,47	225,19	289,8	346
PWBA	(barns)	240,82	294,04	361,81	418,86
La thèse	(barns)	130	195	290	305
Erreur sur l’énergie	(%)	1	0,5	0,5	0,5
Erreur sur la mesure	(%)	3	4	2,5	2,5
Erreur totale	(%)	4	4,5	3	3
Erreur totale	(barns)	5	9	9	9
W		0,34	0,34	0,34	0,34
Section efficace d’ionisation	(barns)	380	570	850	900
Energie	(keV)	9150	9870	10665	11525
GUCSA théorique	(barns)	428,79	494,6	568	647,29
GUCSA référence	(barns)	397,12	460,68	531,74	607,99
ECPSSR	(barns)	411,65	474,77	546,87	621,1
PWBA	(barns)	483,85	545,04	622,11	683,44
La thèse	(barns)	425	485	525	645
Erreur sur l’énergie	(%)	0,5	0,4	0,2	0,3
Erreur sur la mesure	(%)	2,	1,6	2,3	1,7
Erreur totale	(%)	2,5	2	2,5	2
Erreur totale	(barns)	10,5	9,5	14	12
W		0,34	0,34	0,34	0,34
Section efficace d’ionisation	(barns)	1250	1420	1540	1895

TABLE 2.9 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe.

Dans le cas du fer, les deux valeurs de basses énergies semblent être erronées et ne sont ni en accord avec le modèle PWBA ni avec le ECPSSR. Les autres valeurs mettent en exergue le modèle ECPSSR et confirment le choix des sections efficaces théoriques pour GupixWin à plus haute énergie.

Les paramètres de l’ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 6,6\text{E-}6 \pm 0,2\text{E-}6 ; b = 1,8\text{E-}2 \pm 0,2\text{E-}2.$$

Le tableau 2.10 reprend, quant à lui, l’ensemble des données associées au traitement des spectres des expériences réalisées sur le Fe.

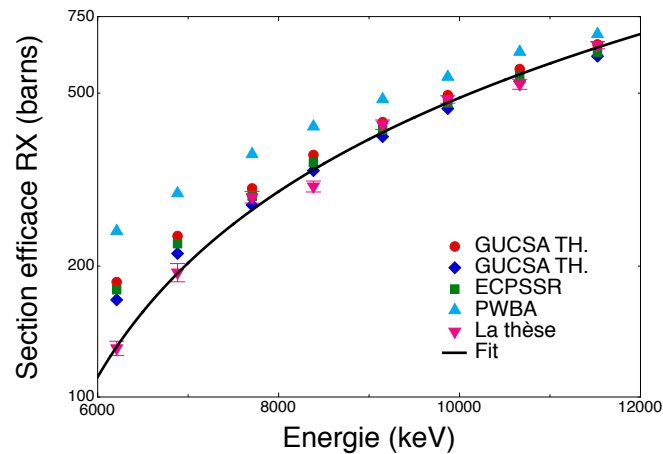


FIGURE 2.8 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe.

Fe K	Energie (MeV)	Particule	Courant ( $\mu C$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,24E-04	230	2,05E-29	2,14E-29	180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,32E-04	240	2,18E-29	(2,47E-31)	180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,33E-04	220	2,21E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,30E-04	220	2,16E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,31E+04	350	2,17E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,21E-04	240	2,00E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,21E-04	250	2,00E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,28E-04	210	2,11E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,30E-04	200	2,16E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,36E-04	210	2,25E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,35E-04	210	2,24E-29		180	
	3,12	Proton	1,00E-06	6,24E+12	1,31E-04	220	2,17E-29		180	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,00E-03	120	2,14E-29		110	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,73E-03	120	2,14E-29		130	130
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,88E-03	120	2,14E-29		140	(3)
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,93E-03	120	2,14E-29		140	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,59E-03	120	2,14E-29		130	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,74E-03	130	2,14E-29		130	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,84E-03	120	2,14E-29		130	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,66E-03	130	2,14E-29		130	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,65E-03	130	2,14E-29		130	
	6,21	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	4,47E-03	130	2,14E-29		120	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	5,57E-03	150	2,14E-29		160	195
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	7,48E-03	140	2,14E-29		210	(6)
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	7,07E-03	150	2,14E-29		200	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	7,39E-03	140	2,14E-29		210	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	7,04E-03	150	2,14E-29		200	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	6,99E-03	140	2,14E-29		190	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	6,88E-03	140	2,14E-29		190	
	6,885	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	7,09E-03	140	2,14E-29		200	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,06E-04	160	2,14E-29		300	290
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,06E-04	160	2,14E-29		290	(4)
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,02E-04	170	2,14E-29		280	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,03E-04	170	2,14E-29		290	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,02E-04	170	2,14E-29		280	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	9,76E-03	170	2,14E-29		270	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,04E-04	160	2,14E-29		290	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,04E-04	170	2,14E-29		290	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,06E-04	160	2,14E-29		290	
	7,71	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,05E-04	160	2,14E-29		290	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,03E-04	180	2,14E-29		290	305
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,06E-04	180	2,14E-29		290	(4)
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,03E-04	190	2,14E-29		290	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,11E-04	180	2,14E-29		310	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,10E-04	180	2,14E-29		310	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,16E-04	180	2,14E-29		320	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,08E-04	180	2,14E-29		300	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,14E-04	180	2,14E-29		320	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,12E-04	180	2,14E-29		310	
	8,385	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,11E-04	190	2,14E-29		310	

Fe K	Energie (MeV)	Particule	Courant ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,49E+04	200	2,14E-29		420	425
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,52E+04	200	2,14E-29		420	(4)
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,61E+04	190	2,14E-29		450	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,55E+04	190	2,14E-29		430	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,52E+04	200	2,14E-29		420	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,49E+04	200	2,14E-29		420	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,55E+04	190	2,14E-29		430	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,49E+04	200	2,14E-29		410	
	9,15	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,50E+04	200	2,14E-29		420	
	9,15	Alpha	3,50E-07	1,11E+12	5,19E+03	120	2,14E-29		410	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,76E+04	200	2,14E-29		490	485
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,78E+04	210	2,14E-29		500	(2)
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,73E+04	210	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,75E+04	210	2,14E-29		490	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,74E+04	210	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,72E+04	210	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,71E+04	210	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,72E+04	200	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,71E+04	210	2,14E-29		480	
	9,87	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,74E+04	210	2,14E-29		480	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,89E+04	220	2,14E-29		530	525
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,95E+04	220	2,14E-29		540	(6)
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,87E+04	220	2,14E-29		520	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,88E+04	220	2,14E-29		520	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,89E+04	220	2,14E-29		530	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,91E+04	220	2,14E-29		530	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,90E+04	210	2,14E-29		530	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,97E+04	220	2,14E-29		550	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,72E+04	220	2,14E-29		480	
	10,665	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	1,82E+04	220	2,14E-29		510	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,31E+04	230	2,14E-29		640	645
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,34E+04	240	2,14E-29		650	(3)
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,34E+04	230	2,14E-29		650	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,35E+04	220	2,14E-29		660	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,27E+04	240	2,14E-29		630	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,31E+04	230	2,14E-29		640	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,28E+04	240	2,14E-29		640	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,31E+04	220	2,14E-29		640	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,27E+04	230	2,14E-29		630	
	11,525	Alpha	1,00E-06	3,12E+12	2,36E+04	220	2,14E-29		660	

TABLE 2.10 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe.

### 2.3.5 Le cuivre

La cible mince de cuivre irradiée n'a pas été la cible "Micromatter". En effet, le laboratoire ne possède qu'une cible de 37 mm de diamètre déposée sur un film ultra fin de "Nuclepore" (un diamètre moins important a été préféré). Une nouvelle cible d'un diamètre de 25 mm a été déposée sur un film ultra mince de mylar par "Ion Beam Sputtering" au Centre Spatial de Liège avec la collaboration du Dr. Fleury-Frenette.

Afin de la caractériser, une analyse XRF (X-Ray Fluorescence) a été mise en oeuvre en collaboration avec F.P. Hocquet. La méthode est couramment utilisée au laboratoire de l'université de Liège grâce à son dispositif transportable, et de ce fait facile à mettre en oeuvre. Il est décrit en détail, ainsi que la géométrie de travail dans différents articles [53][88].

La figure 2.9 reprend le spectre XRF des deux cibles de 37 et 25 mm de diamètre. Les raies K rapprochées du cuivre sont présentes dans les spectres (8,048 et 8,905 keV) et les pics sommes associés. Les raies L (2,984 et 3,151 keV) et K (22,16 et 24,94 keV) de l'argent sont également présentes du fait de l'utilisation d'une anode en argent pour produire les rayons X incidents. La comparaison des aires nettes calculées dans la gamme de canaux de 1237 à 1264, c'est-à-dire la raie  $K_{\alpha}$  qui a la meilleure statistique, a permis de déduire la concentration de la nouvelle cible mince par une simple règle de trois.

La cible de  $52,1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  possède une aire de 145000 ( $\pm 0,3\%$ ) coups, tandis que la cible inconnue possède une aire de 142000 ( $\pm 0,3\%$ ) coups. Une concentration de  $51 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  est alors déduite.

Le tableau 2.11 et le graphique 2.10 reprennent la comparaison de l'ensemble des sections efficaces pour la raie K du Cu. Les deux premiers et les deux derniers résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle ECPSSR et GupixWin. Cependant, pour les autres énergies, les résultats obtenus se situent entre les deux modèles théoriques. A noter, que l'échelle des ordonnées est logarithmique.

Les paramètres de l'ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 3,4\text{E-}6 \pm 0,15\text{E-}6 ; b = -6\text{E-}3 \pm 1,3\text{E-}3$$

Le tableau 2.12 reprend, quant à lui, l'ensemble des données associées au

traitement des spectres des expériences réalisées sur le Cu.

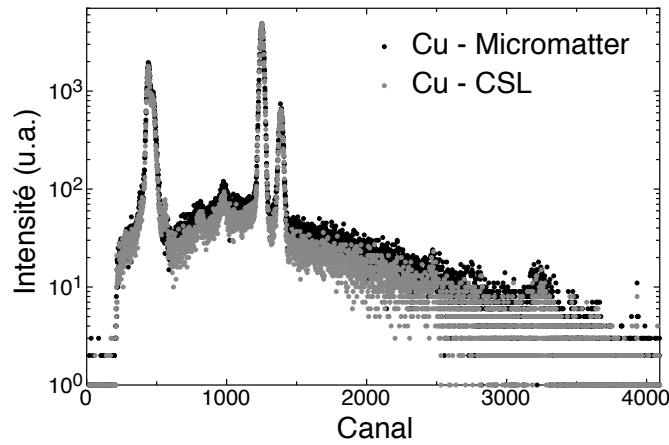


FIGURE 2.9 – Spectres XRF des cibles minces de Cu - Micromatter et CSL.

Energie	(keV)	6210	6885	7707	8385
GUCSA théorique	(barns)	85,232	111,38	147,36	179,72
GUCSA référence	(barns)	78,257	102,21	135,18	165,01
ECPSSR	(barns)	82,755	108,14	143,04	174,44
PWBA	(barns)	118,82	148,73	188,08	222,23
La thèse	(barns)	86,8	115	163	196
Erreur sur l'énergie	(%)	1	1	0,5	0,5
Erreur sur la mesure	(%)	3	2,5	2	3,5
Erreur totale	(%)	4	3,5	2,5	4
Erreur totale	(barns)	3	4	4	8
W		0,44	0,44	0,44	0,44
Section efficace d'ionisation	(barns)	197	262	370	445
Energie	(keV)	9150	9870	10665	11525
GUCSA théorique	(barns)	218,69	257,29	301,57	350,84
GUCSA référence	(barns)	201,25	237,57	279,81	327,52
ECPSSR	(barns)	212,27	249,73	292,69	340,48
PWBA	(barns)	262,18	300,77	344,08	391,34
La thèse	(barns)	2445	281,5	317	356,5
Erreur sur l'énergie	(%)	0,5	0,5	0,5	0,3
Erreur sur la mesure	(%)	3	2,5	2	2,2
Erreur totale	(%)	3,5	3	2,5	2,5
Erreur totale	(barns)	8,5	8	8	9
W		0,44	0,44	0,44	0,44
Section efficace d'ionisation	(barns)	555	640	720	810

TABLE 2.11 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu.

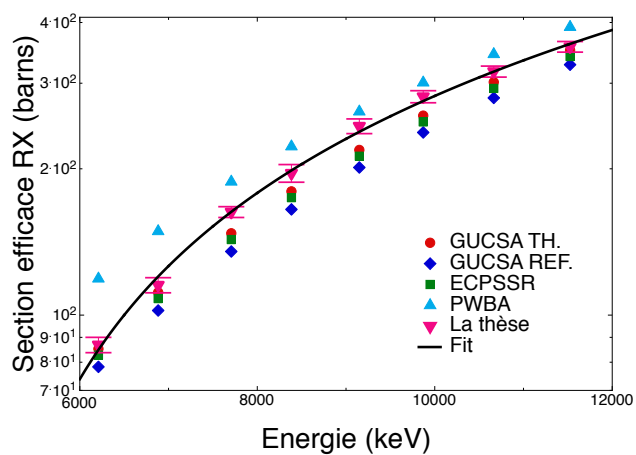


FIGURE 2.10 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu.

Cu K	Energie (MeV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	3,12	Proton	1	6,24E+12	8,28E+03	150	2,68E-29	2,94E-29	102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,24E+03	130	2,99E-29	(3,27E-31)	102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,29E+03	130	3,01E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,16E+03	130	2,97E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,06E+03	130	2,94E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,24E+03	120	2,99E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	8,44E+03	150	2,74E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,46E+03	120	3,07E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,31E+03	120	3,02E-29		102	
	3,12	Proton	1	6,24E+12	9,08E+03	130	2,94E-29		102	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,95E+03	100	2,94E-29		89	87
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	4,02E+03	100	2,94E-29		91	(1,5)
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	4,10E+03	90	2,94E-29		93	
	6,21	Alpha	1	2,59E+12	2,91E+03	110	2,94E-29		79	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,77E+03	100	2,94E-29		85	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,71E+03	110	2,94E-29		84	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	4,07E+03	100	2,94E-29		92	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,80E+03	110	2,94E-29		86	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,93E+03	100	2,94E-29		89	
	6,21	Alpha	1	3,12E+12	3,61E+03	110	2,94E-29		82	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	5,19E+03	120	2,94E-29		117	115
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	4,89E+03	130	2,94E-29		110	(2)
	6,885	Alpha	1	5,29E+12	5,29E+03	110	2,94E-29		119	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	4,65E+03	140	2,94E-29		105	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	5,08E+03	120	2,94E-29		115	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	5,45E+03	100	2,94E-29		123	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	5,10E+03	120	2,94E-29		115	
	6,885	Alpha	1	3,12E+12	5,20E+03	120	2,94E-29		117	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,31E+03	130	2,94E-29		165	163
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,05E+03	140	2,94E-29		159	(1,5)
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,43E+03	130	2,94E-29		168	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,24E+03	140	2,94E-29		164	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,20E+03	130	2,94E-29		163	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,22E+03	130	2,94E-29		163	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,24E+03	130	2,94E-29		163	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,23E+03	130	2,94E-29		163	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,18E+03	140	2,94E-29		162	
	7,71	Alpha	1	3,12E+12	7,10E+03	140	2,94E-29		160	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,13E+03	170	2,94E-29		183	195
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,93E+03	150	2,94E-29		202	(5)
	8,385	Alpha	1	8,79E+12	8,79E+03	150	2,94E-29		198	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,95E+03	150	2,94E-29		202	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,72E+03	150	2,94E-29		197	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,41E+03	160	2,94E-29		190	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,50E+03	160	2,94E-29		192	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,29E+03	160	2,94E-29		187	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	9,48E+03	110	2,94E-29		214	
	8,385	Alpha	1	3,12E+12	8,58E+03	160	2,94E-29		194	



Cu K	Energie (MeV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Moyenne ( $\sigma$ )	Section efficace (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,15E+04	130	2,94E-29		260	245
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,12E+04	150	2,94E-29		253	(5)
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,10E+04	160	2,94E-29		247	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,09E+04	170	2,94E-29		245	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,04E+04	180	2,94E-29		235	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,05E+04	170	2,94E-29		237	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,08E+04	170	2,94E-29		243	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,06E+04	170	2,94E-29		240	
	9.15	Alpha	1	3,12E+12	1,07E+04	160	2,94E-29		242	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,27E+04	180	2,94E-29		286	280
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,28E+04	180	2,94E-29		289	(4)
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,27E+04	170	2,94E-29		287	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,18E+04	190	2,94E-29		266	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,23E+04	190	2,94E-29		278	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,25E+04	170	2,94E-29		283	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,25E+04	180	2,94E-29		282	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,25E+04	180	2,94E-29		283	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,24E+04	180	2,94E-29		279	
	9.87	Alpha	1	3,12E+12	1,25E+04	180	2,94E-29		282	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,40E+04	190	2,94E-29		316	315
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,45E+04	180	2,94E-29		326	(4)
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,44E+04	170	2,94E-29		326	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,38E+04	200	2,94E-29		311	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,41E+04	180	2,94E-29		318	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,41E+04	190	2,94E-29		319	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,40E+04	190	2,94E-29		317	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,36E+04	190	2,94E-29		307	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,38E+04	190	2,94E-29		311	
	10.665	Alpha	1	3,12E+12	1,42E+04	190	2,94E-29		320	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,53E+04	210	2,94E-29		346	355
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,57E+04	200	2,94E-29		354	(4)
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,57E+04	200	2,94E-29		354	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,64E+04	190	2,94E-29		370	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,55E+04	200	2,94E-29		350	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,57E+04	190	2,94E-29		355	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,57E+04	190	2,94E-29		355	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,60E+04	190	2,94E-29		362	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,59E+04	200	2,94E-29		360	
	11.525	Alpha	1	3,12E+12	1,60E+04	190	2,94E-29		361	

TABLE 2.12 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu.

### 2.3.6 L'or

La cible mince d'or a, pour les même raisons, également été changée. Elle a été déposée sur un film ultra mince de mylar par "RF Magnetron Sputtering" au CSL.

La figure 2.11 reprend le spectre XRF des deux cibles de 37 et 25 mm de diamètre. Les raies L (9,713 et 11,44 keV pour les deux principales) et M (2,123 keV) de l'or sont présentes dans les spectres. Les raies L (2,984 et 3,151 keV) et K (22,16 et 24,94 keV) de l'argent sont également présentes. Cependant, les raies L ne sont pas totalement séparées de la raie  $M\alpha$  de l'or. De ce fait, la raie  $L\alpha$  a été préférée pour les calculs.

La comparaison des aires nettes calculées, dans la gamme de canaux de 1499 à 1530, a permis de déduire la concentration de la nouvelle cible mince.

La cible de  $47,5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  possède une aire de  $39380 (\pm 0,5\%)$  coups, tandis que la cible inconnue possède une aire de  $36900 (\pm 0,5\%)$  coups. Une concentration de  $44,5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  est alors déduite.

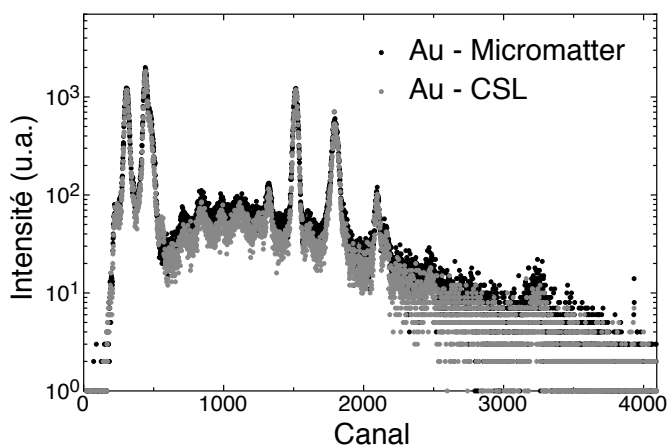


FIGURE 2.11 – Spectres XRF des cibles minces de Au - Micromatter et CSL.

Le tableau 2.13 et les graphiques 2.12 à 2.13 reprennent la comparaison de l'ensemble des sections efficaces pour les raies L2 et L3 de l'or. La raie L1 n'a pas une statistique suffisante pour être traitée.

La notation des raies, introduite dans la première partie de la thèse (dédiée

aux méthodes), est utilisée en correspondance avec les bases de données du logiciel GupixWin.

Les résultats expérimentaux mettent deux tendances en évidence dans le cas de la raie L2.

A basse énergie, les données s'accordent mieux avec le modèle PWBA. Cependant, à plus haute énergie, les données tendent petit à petit vers le deuxième modèle. Les résultats suggèrent une valeur intermédiaire. Il est important de remarquer que les sections efficaces dites de référence sont en fait égales aux théoriques du fait du manque [16][89][90] de bases de données. De plus, les sections sont très faibles et donc sujettes à plus d'erreur à cause d'une statistique de comptage très faible.

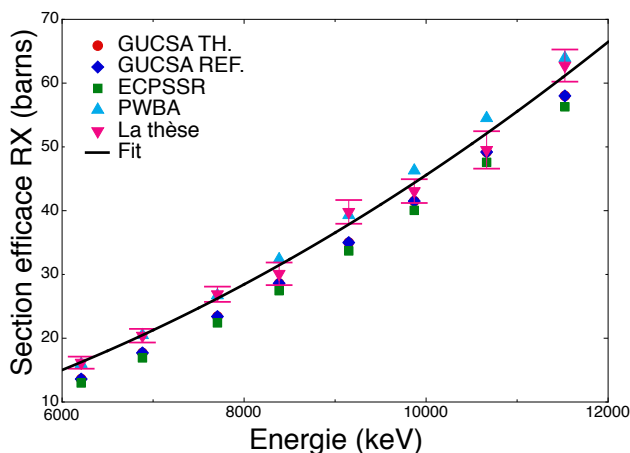


FIGURE 2.12 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L2 de l'Au.

Pour la raie L2, les paramètres de l'ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX; a = -5,1E-7 \pm 0,4E-7; b = -5E-4 \pm 3E-4.$$

Pour la raie L3, les résultats sont en parfait accord avec le modèle théorique ECPSSR. La statistique (et donc l'erreur) est meilleure que pour la raie L2 suite à l'augmentation significative des sections efficaces.

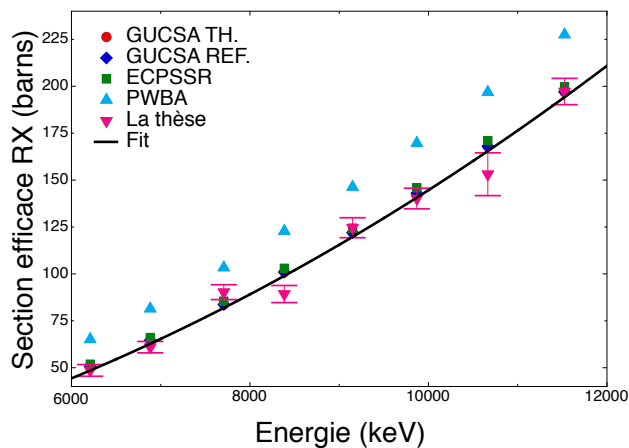


FIGURE 2.13 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L3 de l’Au.

Pour la raie L3, les paramètres de l’ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 1,7E-6 \pm 0,01E-6 ; b = -2,5E-3 \pm 1E-3.$$

Le tableau 2.14 reprend, quant à lui, l’ensemble des données associées au traitement des spectres des expériences réalisées sur l’or.

Energie (keV)	GUCSA théorique (barns)	GUCSA référence (barns)	ECFSSR (barns)	PWBA (barns)	La thèse (barns)	Erreur sur l'énergie (%)	Erreur sur la mesure (%)	Erreur totale (%)	Erreur totale (barns)	W	Section efficace d'ionisation (barns)
6210	L1	0,76	0,76	1,032	/	1	0	1	0	0,329722	0
	L2	13,6	13,6	15,96	16,2	0,8	5,2	6	1	0,37304	43,35
	L3	50,7	50,7	65,164	48,5	1	5,5	6,5	3,1	0,32	152
6885	L1	0,987	0,987	1,3029	/	1	0	1	0	0,329722	0
	L2	17,7	17,7	20,487	20,4	0,5	4,5	5	1	0,37304	54,7
	L3	64,7	64,7	66,105	61	0,6	4,4	5	3	0,32	190,53
7710	L1	1,43	1,43	1,8726	/	1,5	0	1,5	0	0,329722	0
	L2	23,4	23,4	22,407	26,9	0,5	4	4,5	1,2	0,37304	72
	L3	83,7	83,7	85,503	90,3	0,5	4	4,5	4	0,32	282
8385	L1	1,97	1,97	2,357	/	0,5	0	0,50	0	0,329722	0
	L2	28,6	28,6	27,454	32,377	0,8	5,2	6	1,8	0,37304	80,7
	L3	101	101	103,03	122,85	0,6	4,4	5	4,5	0,32	279
9150	L1	2,77	2,77	3,3168	3,6117	1	0	1	0	0,329722	0
	L2	35	35	33,69	39,298	0,7	4,3	5	1,86	0,37304	107
	L3	122	122	124,39	146,32	0,8	3,2	4	5,5	0,32	389
9870	L1	3,73	3,73	4,463	4,8662	0,5	0	0,5	0	0,329722	0
	L2	41,5	41,5	40,05	46,292	0,5	3,5	4	2	0,37304	115
	L3	143	143	145,88	169,71	0,7	3,3	4	5,5	0,32	438
10665	L1	5,01	5,01	6,0047	6,5543	0,8	0	0,8	0	0,329	0
	L2	49,2	49,2	47,584	54,507	0,5	5,5	6	3	0,37	133
	L3	168	168	171,06	196,83	0,6	6,9	7,5	11	0,32	478
11525	L1	6,6	6,6	7,99	8,7263	0,75	0	0,75	0	0,33	0
	L2	58	58	56,287	63,917	0,5	3,5	4	2,5	0,37	168
	L3	197	197	199,81	227,51	0,5	3	3,5	7	0,32	616

TABLE 2.13 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l’Au.

Au	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	530	3,36E-29	3,51E-29	18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	550	3,47E-29	(6,12E-31)	18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	520	3,28E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	570	3,58E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	610	3,88E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	590	3,74E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	520	3,26E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	550	3,49E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	550	3,50E-29		18,6	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	560	3,54E-29		18,6	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1400	2,93E-29	2,74E-29	56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1310	2,74E-29	(5,09E-31)	56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1340	2,79E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1310	2,74E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1260	2,62E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1320	2,75E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1330	2,78E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1270	2,64E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1340	2,80E-29		56,4	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1280	2,66E-29		56,4	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	260	3,51E-29		17,4	16
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	210	3,51E-29		14,2	(0,5)
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	210	3,51E-29		13,9	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	220	3,51E-29		14,8	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	250	3,51E-29		16,8	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	220	3,51E-29		15,1	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	260	3,51E-29		17,4	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	290	3,51E-29		19,3	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	260	3,51E-29		17,2	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	230	3,51E-29		15,6	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	530	2,74E-29		45,4	48,5
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	590	2,74E-29		50,6	(2)
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	490	2,74E-29		42,0	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	550	2,74E-29		46,8	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	630	2,74E-29		53,9	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	450	2,74E-29		38,3	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	640	2,74E-29		54,5	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	530	2,74E-29		45,8	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	640	2,74E-29		55,0	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	620	2,74E-29		53,4	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	360	3,51E-29		24,1	20,4
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	300	3,51E-29		19,8	(3)
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	290	3,51E-29		19,5	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	270	3,51E-29		18,4	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	320	3,51E-29		21,1	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	330	3,51E-29		22,1	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	300	3,51E-29		20,3	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	320	3,51E-29		21,7	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	280	3,51E-29		18,6	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	270	3,51E-29		18,3	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	660	2,74E-29		56,4	61
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	710	2,74E-29		60,8	(2,5)
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	730	2,74E-29		62,2	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	620	2,74E-29		53,3	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	700	2,74E-29		59,8	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	680	2,74E-29		58,0	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	730	2,74E-29		62,5	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	710	2,74E-29		60,7	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	830	2,74E-29		71,2	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	760	2,74E-29		64,8	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	390	3,51E-29		26,2	26,9
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	450	3,51E-29		29,9	(2)
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	380	3,51E-29		25,2	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	420	3,51E-29		28,0	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	410	3,51E-29		27,2	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	440	3,51E-29		29,3	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	360	3,51E-29		24,2	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	370	3,51E-29		25,0	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	390	3,51E-29		25,9	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	420	3,51E-29		28,3	

Au	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	910	2,74E-29		78,2	90,4
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1010	2,74E-29		86,5	(2)
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1090	2,74E-29		93,7	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1040	2,74E-29		89,2	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1150	2,74E-29		98,8	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1100	2,74E-29		94,1	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1040	2,74E-29		89,3	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1050	2,74E-29		90,4	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1090	2,74E-29		93,9	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	1050	2,74E-29		89,7	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	390	3,51E-29		26,3	30,1
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	530	3,51E-29		35,8	(3,5)
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	420	3,51E-29		28,1	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	410	3,51E-29		27,5	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	440	3,51E-29		29,6	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	440	3,51E-29		29,3	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	490	3,51E-29		32,6	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	420	3,51E-29		28,5	
L2	8385	Alpha	1	5,84E+11	90	3,51E-29		33,1	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	980	2,74E-29		83,8	89,3
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	940	2,74E-29		80,5	(2,5)
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	1110	2,74E-29		95,5	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	1040	2,74E-29		88,9	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	970	2,74E-29		82,8	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	1070	2,74E-29		91,9	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	1170	2,74E-29		100,7	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	1100	2,74E-29		94,6	
L3	8385	Alpha	1	5,84E+11	190	2,74E-29		84,8	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	670	3,51E-29		44,6	39,8
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	530	3,51E-29		35,5	(2,5)
L2	9150	Alpha	1	1,28E+12	250	3,51E-29		41,3	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	560	3,51E-29		37,5	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	570	3,51E-29		38,2	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	550	3,51E-29		36,9	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	580	3,51E-29		38,8	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	600	3,51E-29		40,0	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	640	3,51E-29		43,1	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	630	3,51E-29		42,3	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1510	2,74E-29		129,3	125
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1470	2,74E-29		125,9	(1,5)
L3	9150	Alpha	1	1,28E+12	530	2,74E-29		111,7	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1440	2,74E-29		123,5	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1530	2,74E-29		131,0	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1430	2,74E-29		122,6	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1520	2,74E-29		130,3	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1480	2,74E-29		126,9	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1360	2,74E-29		116,5	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1500	2,74E-29		128,5	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	650	3,51E-29		43,4	43,1
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	730	3,51E-29		49,2	(2)
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	670	3,51E-29		45,0	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	580	3,51E-29		38,8	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	630	3,51E-29		42,0	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	640	3,51E-29		42,6	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	590	3,51E-29		39,8	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	640	3,51E-29		42,8	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	650	3,51E-29		43,6	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	650	3,51E-29		43,6	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1610	2,74E-29		138,0	140
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1520	2,74E-29		130,1	(1,5)
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1760	2,74E-29		150,5	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1680	2,74E-29		144,2	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1600	2,74E-29		137,4	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1720	2,74E-29		147,4	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1590	2,74E-29		136,3	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1630	2,74E-29		139,6	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1580	2,74E-29		135,9	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1660	2,74E-29		142,6	

Au	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu C$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	810	3,51E-29		54,1	49,5
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	760	3,51E-29		50,7	(4)
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	670	3,51E-29		45,1	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	750	3,51E-29		50,2	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	730	3,51E-29		48,9	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	800	3,51E-29		53,4	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	550	3,51E-29		36,7	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	800	3,51E-29		53,4	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	790	3,51E-29		53,2	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1630	2,74E-29		139,6	155
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1820	2,74E-29		156,1	(5)
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1640	2,74E-29		140,6	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1900	2,74E-29		162,7	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1870	2,74E-29		160,0	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1980	2,74E-29		169,9	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1210	2,74E-29		103,7	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	2140	2,74E-29		183,6	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1890	2,74E-29		162,0	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	920	3,51E-29		61,7	62,7
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	900	3,51E-29		60,3	(1,5)
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	1000	3,51E-29		66,8	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	930	3,51E-29		62,6	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	940	3,51E-29		63,3	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	1030	3,51E-29		68,8	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	960	3,51E-29		64,3	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	930	3,51E-29		62,3	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	840	3,51E-29		56,1	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	910	3,51E-29		61,3	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2270	2,74E-29		194,8	197
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2340	2,74E-29		200,8	(1)
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2370	2,74E-29		203,2	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2230	2,74E-29		191,1	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2280	2,74E-29		195,7	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2420	2,74E-29		207,6	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2320	2,74E-29		199,1	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2390	2,74E-29		205,0	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2140	2,74E-29		183,3	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	2230	2,74E-29		191,6	

TABLE 2.14 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l’Au.



### 2.3.7 Le plomb

La cible “Micromatter” de  $50,1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de plomb déposé sur un filtre ultra mince de “Nuclepore” de 25 mm de diamètre a été irradiée.

Le tableau 2.13 et les graphiques 2.14 à 2.16 reprennent la comparaison de l'ensemble des sections efficaces pour les raies L1, L2 et L3 du Pb.

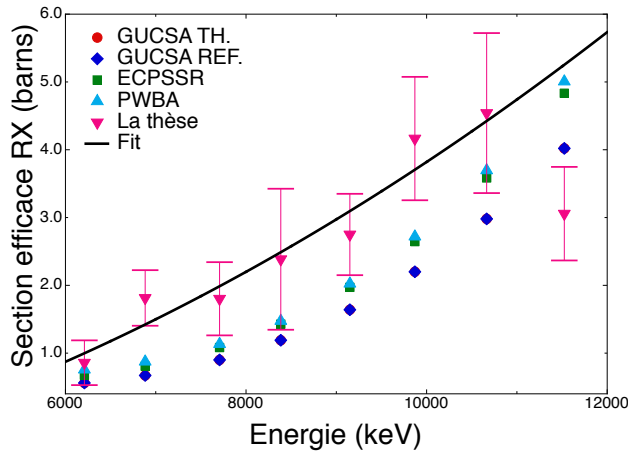


FIGURE 2.14 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L1 du Pb.

Les sections efficaces pour la raie L1 sont extrêmement faibles et il est, dès lors, difficile d'obtenir une statistique convenable. Les résultats expérimentaux comportent des erreurs énormes et semblent être incompatibles avec les deux modèles théoriques. Une dose de particules plus importante devraient être utilisée pour obtenir de meilleurs résultats.

Dans le cas de la raie L1, les paramètres de l'ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 3\text{E-}8 \pm 1\text{E-}8 ; b = 2\text{E-}4 \pm 1\text{E-}4.$$

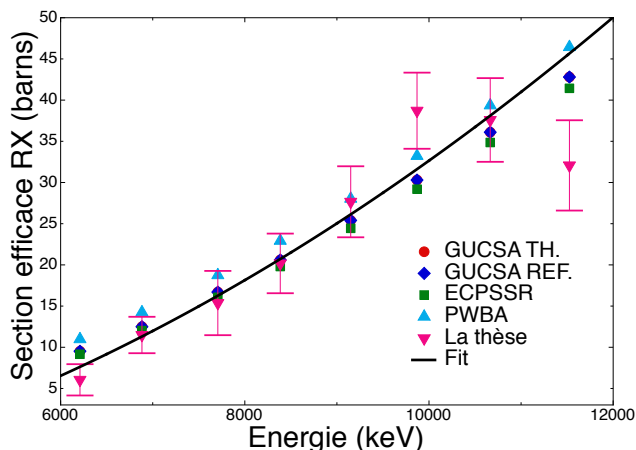


FIGURE 2.15 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L2 du Pb.

Pour la raie L2, les sections efficaces sont toujours relativement faibles, bien que légèrement supérieures à celles de la raie L1. Les résultats expérimentaux s'accordent mieux avec le modèle ECPSSR aux basses énergies et semblent tendre vers le second modèle à plus haute énergie. Il faut noter que les erreurs sont importantes à haute énergie et qu'il est donc risqué de conclure pour les faisceaux de haute énergie. De plus, le dernier résultat, à 11,525 MeV sort totalement de la tendance et peut donc être considéré comme erroné.

Dans le cas de la raie L2, les paramètres de l'ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 4,8E-7 \pm 0,8E-7 ; b = -1,7E-3 \pm 0,7E-3.$$

Dans le cas de la raie L3, les sections efficaces sont suffisamment élevées. Les résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle ECPSSR excepté pour les deux premières énergies. La section efficace et la statistique étant plus faibles, la dose devrait également être augmentée aux basses énergies pour s'affranchir de ce problème. Le dernier résultat, à 11,525 MeV sort également totalement de la tendance et peut donc être considéré comme erroné.

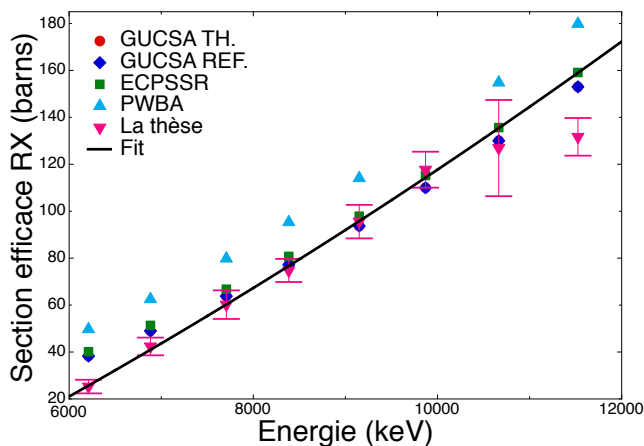


FIGURE 2.16 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L3 du Pb.

Les paramètres de l'ajustement sont de :

$$Y = aX^2 + bX ; a = 1,55E-6 \pm 0,1E-6 ; b = -5E-3 \pm 1E-3.$$

Le tableau 2.16 reprend, quant à lui, l'ensemble des données associées au traitement des spectres des expériences réalisées sur le Pb.

Energie (keV)	GUCSA théorique (barns)	GUCSA référence (barns)	ECPSR (barns)	PWBA (barns)	La thèse (barns)	Erreur l'énergie (%)	Erreur la mesure (%)	Erreur totale (%)	Erreur totale (barns)	W	Section efficace d'ionisation (barns)
6210	L1	0,56	0,67505	0,75706	1	0,5	37,5	38	0,33	0,372831	2
	L2	9,52	9,1569	10,978	6	1,0	31	32	1,90	0,41476	15
	L3	38,3	40,132	49,697	25,3	1,0	10	11	2,90	0,36	70
6885	L1	0,671	0,80811	0,87452	2	1,0	22	23	0,41	0,372831	5
	L2	12,5	12,028	14,242	11,5	1,0	18	19	2,21	0,41476	30
	L3	49	51,352	62,512	42,5	1,0	8	9	3,77	0,36	118
7710	L1	0,9	1,0826	1,1342	2	1,0	29	30	0,54	0,372831	5
	L2	16,7	16,065	18,7479	15,4	0,5	24,5	25	3,90	0,41476	40
	L3	63,8	66,761	79,823	60	0,5	9,5	10	6,09	0,36	170
8385	L1	1,19	1,4279	1,4751	2,5	1,0	43	44	1,04	0,372831	7
	L2	20,6	19,8	22,923	20	0,5	17,5	18	3,62	0,41476	50
	L3	77,2	80,752	95,322	75	0,6	6,4	7	4,92	0,36	210
9150	L1	1,64	1,9709	2,0248	3	0,6	21,4	22	0,60	0,372831	8
	L2	25,4	24,438	28,029	28	0,4	15,6	16	4,31	0,41476	65
	L3	93,7	97,879	114,08	95,5	0,5	6,5	7	7,14	0,36	265
9870	L1	2,2	2,6453	2,7191	4	1,0	21	22	0,91	0,372831	10
	L2	30,3	29,193	33,221	38	0,3	11,7	12	4,62	0,41476	90
	L3	110	115,22	13,288	118	1,0	6	7	7,66	0,36	325
10665	L1	2,98	3,5841	3,6962	4,5	0,7	25,3	26	1,18	0,372831	10
	L2	36,1	34,856	39,358	38	0,3	13,7	14	5,08	0,41476	90
	L3	130	135,63	154,82	127	0,8	12,2	16	20,51	0,36	350
11525	L1	4,02	4,8332	5,0062	3	0,7	21,7	22	0,69	0,372831	8
	L2	42,8	41,432	46,435	32	0,2	16,8	17	5,48	0,41476	80
	L3	153	159,1	179,82	132	0,7	5,3	6	8,02	0,36	365

TABLE 2.15 – Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Pb.

Pb	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	30	1,90E-29	2,95E-29	1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	60	4,17E-29	2,9E-30	1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	40	2,80E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	30	2,35E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	40	3,23E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	40	3,12E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	60	4,05E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	40	2,75E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	20	1,36E-29		1,4	
L1	3120	Proton	1	6,24E+12	50	3,71E-29		1,4	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	140	9,76E-30	1,1E-29	14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	160	1,17E-29	6E-31	14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	150	1,07E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	170	1,22E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	180	1,27E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	170	1,23E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	190	1,38E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	170	1,18E-29		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	120	8,52E-30		14,0	
L2	3120	Proton	1	6,24E+12	110	7,91E-30		14,0	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	840	1,90E-29	2,15E-29	43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1030	2,34E-29	6E-31	43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	930	2,11E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	990	2,24E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	960	2,18E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	970	2,21E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	900	2,04E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	880	1,99E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	810	1,84E-29		43,8	
L3	3120	Proton	1	6,24E+12	1090	2,48E-29		43,8	
L1	6210	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1,3	0,86
L1	6210	Alpha	1	3,12E+12	0	2,94E-29		0,1	(0,24)
L1	6210	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		0,7	
L1	6210	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		0,8	
L1	6210	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1,5	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	80	1,11E-29		15	6
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	10	1,11E-29		2	(1,5)
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	30	1,11E-29		6	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	10	1,11E-29		3	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	20	1,11E-29		4	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	60	1,11E-29		10	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	40	1,11E-29		7	
L2	6210	Alpha	1	3,12E+12	10	1,11E-29		2	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	300	2,13E-29		28	25,5
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	340	2,13E-29		31	(2)
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	260	2,13E-29		24	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	220	2,13E-29		21	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	250	2,13E-29		23	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	270	2,13E-29		25	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	360	2,13E-29		33	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	150	2,13E-29		14	
L3	6210	Alpha	1	3,12E+12	310	2,13E-29		29	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	1,8
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	(0,2)
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		2	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		1	
L1	6885	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	110	1,11E-29		19	11,5
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	40	1,11E-29		7	(1,5)
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	70	1,11E-29		13	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	100	1,11E-29		17	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	50	1,11E-29		8	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	80	1,11E-29		14	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	80	1,11E-29		14	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	50	1,11E-29		9	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	30	1,11E-29		6	
L2	6885	Alpha	1	3,12E+12	30	1,11E-29		6	

Pb	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	480	2,13E-29		45	42,5
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	490	2,13E-29		45	(2)
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	340	2,13E-29		31	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	530	2,13E-29		49	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	340	2,13E-29		32	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	560	2,13E-29		52	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	510	2,13E-29		48	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	460	2,13E-29		42	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	430	2,13E-29		40	
L3	6885	Alpha	1	3,12E+12	420	2,13E-29		39	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	1,8
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		2	(0,4)
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		1	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	60	2,94E-29		4	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		1	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	
L1	7710	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	120	1,11E-29		22	15,5
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	80	1,11E-29		15	(2)
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	130	1,11E-29		23	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	50	1,11E-29		9	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	130	1,11E-29		23	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	80	1,11E-29		14	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	70	1,11E-29		13	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	60	1,11E-29		11	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	30	1,11E-29		6	
L2	7710	Alpha	1	3,12E+12	100	1,11E-29		19	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	790	2,13E-29		74	60
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	540	2,13E-29		51	(4)
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	680	2,13E-29		63	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	490	2,13E-29		46	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	770	2,13E-29		72	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	650	2,13E-29		60	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	850	2,13E-29		79	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	430	2,13E-29		40	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	590	2,13E-29		55	
L3	7710	Alpha	1	3,12E+12	670	2,13E-29		62	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	2,5
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		2	(0,75)
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		4	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L1	8385	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		1	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	120	1,11E-29		22	20
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	100	1,11E-29		17	(2,5)
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	170	1,11E-29		30	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	140	1,11E-29		25	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	140	1,11E-29		26	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	100	1,11E-29		18	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	60	1,11E-29		10	
L2	8385	Alpha	1	3,12E+12	70	1,11E-29		12	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	910	2,13E-29		84	75
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	850	2,13E-29		79	(2)
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	880	2,13E-29		82	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	780	2,13E-29		73	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	780	2,13E-29		72	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	710	2,13E-29		66	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	770	2,13E-29		72	
L3	8385	Alpha	1	3,12E+12	740	2,13E-29		69	

Pb	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		2	2,75
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	(0,3)
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		5	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	20	2,94E-29		2	
L1	9150	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	150	1,11E-29		27	28
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	200	1,11E-29		36	(3)
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	220	1,11E-29		40	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	150	1,11E-29		27	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	100	1,11E-29		18	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	200	1,11E-29		36	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	170	1,11E-29		30	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	140	1,11E-29		25	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	60	1,11E-29		11	
L2	9150	Alpha	1	3,12E+12	150	1,11E-29		27	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1030	2,13E-29		96	95
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1100	2,13E-29		103	(4)
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1290	2,13E-29		120	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1040	2,13E-29		97	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1090	2,13E-29		101	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1060	2,13E-29		98	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	860	2,13E-29		80	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	1010	2,13E-29		94	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	870	2,13E-29		81	
L3	9150	Alpha	1	3,12E+12	900	2,13E-29		84	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		4	4,2
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		1	(0,5)
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		6	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		4	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		5	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		5	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		5	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	60	2,94E-29		4	
L1	9870	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		6	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	250	1,11E-29		46	39
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	150	1,11E-29		27	(2)
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	240	1,11E-29		42	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	190	1,11E-29		33	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	140	1,11E-29		26	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	230	1,11E-29		41	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	220	1,11E-29		40	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	250	1,11E-29		45	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	230	1,11E-29		41	
L2	9870	Alpha	1	3,12E+12	260	1,11E-29		47	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1280	2,13E-29		119	118
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1030	2,13E-29		96	(3)
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1320	2,13E-29		123	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1180	2,13E-29		110	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1190	2,13E-29		111	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1360	2,13E-29		126	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1360	2,13E-29		126	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1380	2,13E-29		128	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1250	2,13E-29		116	
L3	9870	Alpha	1	3,12E+12	1290	2,13E-29		120	

Pb	Energie (keV)	Particule	Dose ( $\mu\text{C}$ )	Nombre de particules	Intensité (u.a.)	LOD (u.a.)	Facteur de géométrie	Section efficace RX (barns)	Moyenne ( $\sigma$ )
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		5	4,5
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	100	2,94E-29		7	(1)
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	60	2,94E-29		4	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		2	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		5	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	70	2,94E-29		5	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		6	
L1	10665	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	160	1,11E-29		29	37,5
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	230	1,11E-29		42	(3)
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	180	1,11E-29		33	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	290	1,11E-29		52	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	120	1,11E-29		22	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	200	1,11E-29		35	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	230	1,11E-29		41	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	250	1,11E-29		45	
L2	10665	Alpha	1	3,12E+12	220	1,11E-29		40	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1320	2,13E-29		123	130
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1440	2,13E-29		135	(15)
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1180	2,13E-29		110	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1480	2,13E-29		138	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1010	2,13E-29		94	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1420	2,13E-29		133	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1470	2,13E-29		137	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1490	2,13E-29		139	
L3	10665	Alpha	1	3,12E+12	1420	2,13E-29		132	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		2	3
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	30	2,94E-29		2	(0,5)
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		2	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	60	2,94E-29		4	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	40	2,94E-29		3	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	60	2,94E-29		4	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	80	2,94E-29		5	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	10	2,94E-29		1	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		3	
L1	11565	Alpha	1	3,12E+12	50	2,94E-29		4	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	170	1,11E-29		31	32
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	220	1,11E-29		40	(3)
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	60	1,11E-29		12	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	260	1,11E-29		46	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	70	1,11E-29		12	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	200	1,11E-29		36	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	230	1,11E-29		41	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	190	1,11E-29		33	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	190	1,11E-29		34	
L2	11565	Alpha	1	3,12E+12	200	1,11E-29		36	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1370	2,13E-29		128	131
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1250	2,13E-29		116	(3)
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1400	2,13E-29		130	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1570	2,13E-29		146	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1300	2,13E-29		121	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1390	2,13E-29		130	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1600	2,13E-29		149	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1340	2,13E-29		125	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1410	2,13E-29		132	
L3	11565	Alpha	1	3,12E+12	1500	2,13E-29		140	

TABLE 2.16 – Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Pb.



# Conclusion

La méthode mise au point pour la mesure de sections efficaces de production de rayons X avec des particules  $\alpha$  de 6 à 12 MeV, basée sur l'utilisation de cibles minces, donne des résultats en bon accord avec ceux proposés par le modèle théorique ECPSSR pour les éléments étudiés. Les sections efficaces des raies K de l'Al, du Si, du Fe et du Cu ont été mesurées. Ceci permet donc de les introduire dans les bases de données qui seront utilisables dans les analyses par la méthode PIXE pour des faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie.

Les perspectives sont, dès à présent, nombreuses. Le manque important de bases données pour les sections efficaces expérimentales de production de rayons X peut être désormais comblé pour les particules  $\alpha$  de haute énergie. En parallèle, pour profiter au mieux de la complémentarité des méthodes par faisceaux d'ions, les sections efficaces non-Rutherford doivent également être mesurées pour les éléments dans la même gamme d'énergie.

Le nouveau dispositif sous vide sera donc employé couramment au sein de l'Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie pour définir les données fondamentales nécessaires pour s'assurer de la qualité des analyses archéométriques PIXE/RBS(/PIGE) avec des faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie.



# Conclusion Générale

Depuis la création du Centre Européen d'Archéométrie en 2003, l'utilisation du cyclotron de l'Institut de Physique Nucléaire, Atomique et de Spectroscopie permet l'analyse d'objets industriels ou du patrimoine culturel avec les méthodes par faisceaux d'ions (PIXE/PIGE/RBS) extraits à l'air. Afin de tirer profit des particules  $\alpha$  de haute énergie accessibles, l'ensemble des facilités existantes associées à l'accélérateur a été amélioré dans le cadre de la thèse. De plus, de nouveaux dispositifs ont été développés dans la même perspective.

Une collaboration entre l'IPNAS et le Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf a permis d'établir et de vérifier les calibrations des différents détecteurs associés aux méthodes par faisceaux d'ions extraits pour l'étude de la composition, des concentrations et de la structure en couches des objets.

Une seconde collaboration entre l'IPNAS et le Centre de Recherche et de Restauration des Musées de France a mis en évidence l'intérêt de l'utilisation de faisceaux de particules  $\alpha$  dans le cadre de la méthode PIXE.

La complémentarité et la simultanéité des expériences avec la méthode PIXE et la méthode RBS, qui obtient les meilleurs résultats en terme de résolution en masse avec les particules  $\alpha$ , est dès lors envisageable.

De plus, le faible pouvoir de pénétration des particules  $\alpha$  est compensé par l'augmentation de l'énergie afin d'obtenir des analyses par les faisceaux d'ions sondant une profondeur comparable à celle du faisceau de proton de 3 MeV.

Ensuite, le dispositif développé et dédié aux mesures de sections efficaces de production de rayons X a été utilisé sur des cibles minces. Les résultats, comparés aux résultats des modèles théoriques existants, permettent de commencer à combler le manque de bases de données pour les particules  $\alpha$  de 6 à 12 MeV.

Finalement, la réalisation de cette thèse permet de laisser entrevoir plusieurs perspectives pour l'avenir :

- l'application des faisceaux de particules  $\alpha$  de haute énergie pour l'étude de couches de corrosions, de patines intentionnelles ou non et de couches essentiellement composées d'éléments légers, au sein du Centre Européen d'Archéométrie ;
- la continuation des mesures de sections efficaces de production de rayons X avec les particules  $\alpha$  de haute énergie avec le dispositif sous vide ;
- l'utilisation de la chambre sous vide pour des mesures de sections efficaces non-Rutherford avec les particules  $\alpha$  de haute énergie dans le cadre de la méthode RBS, afin de profiter de la complémentarité et de la possibilité d'emploi simultané des méthodes par faisceaux d'ions disponibles à l'Institut de Physique Nucléaire Atomique et de Spectroscopie ;
- l'utilisation de faisceaux "exotiques" pour répondre à des problématiques soulevées par les analyses conventionnelles avec les faisceaux de protons de 3 MeV sur différents objets industriels ou du patrimoine culturel ;
- la création d'une collaboration avec l'IAEA dans le cadre d'un projet de mesures de sections efficaces de production de rayons  $\gamma$  avec des particules incidentes de haute énergie.

# Bibliographie

- [1] Sven A.E. Johansson, John L. Campbell, and Klas G.Malmqvist. *Particle-induced X-ray emission spectrometry*, volume 133. Wiley interscience, 1995.
- [2] R. Curtis Bird and J.S. Williams. *Ion beam for material analysis*. 1990.
- [3] S. Arrhenius. *Recherches sur la conductivité galvanique des électrolytes*. PhD thesis, Stockholm, Royal Publishing House, 1884.
- [4] E. Rutherford. The scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  particles by matter and the structure of the atom. *Ph. Magazine*, Series 6(21), May 1911.
- [5] S. Rubin, T.O. Passel, and E. Bailey. *Analytical Chemistry*, (29) :736, 1957.
- [6] J. Chadwick. *Phil. Mag.*, 24 :594, 1912.
- [7] R. Castaing. *Application des sondes électroniques à une méthode d'analyse ponctuelle chimique et cristallographique*. PhD thesis, Université de Paris, 1951.
- [8] T.B. Johansson, K.R. Axelsson, and S.A.E Johansson. *Nucl. Instr. Meth*, (84) :141, 1970.
- [9] Serge Van Den Broeck. Etude de la ligne d'analyse du cyclotron de Liège. Master's thesis, ULg, 1976.
- [10] A. Adriaens and G. Demortier. COST actions G1 and G8 : EU programs on the use of radiation in art and archaeometry. *Nucl. Instr. Meth B*, 226 :3–9, 2004.
- [11] J.C. Dran, J. Salomon, T. Calligaro, and Ph Walter. Ion beam analysis of art works : 14 years of use in the Louvre. *Nucl. Instr. Meth B*, 219-220 :7–15, 2004.
- [12] N. Grassi. Differential and scanning-mode external PIXE for the analysis of the painting "Ritratto Trivulzio" by Antonello da Messina. *Nucl. Instr. Meth B*, 267 :825–831, 2009.

- [13] I.M. Govil. Proton induced X-ray emission - A tool for non-destructive trace element analysis. *Current Science*, 80(12) :1542–1549, June 2001.
- [14] T. Calligaro, J.C. Dran, E. Ioannidou, B. Moignard, L. Pichon, and J. Salomon. Development of an external beam nuclear microprobe on the Aglae facility of the Louvre museum. *Nucl. Instr. Meth B*, 161-163 :328–333, 2000.
- [15] M.O. Krause. Atomic radiative and radiationless yields for K and L Shells. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 8(2) :307, 1979.
- [16] H. Paul and O. Bolik. Fitted empirical reference cross sections for K-Shell ionization by alpha particles. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 54 :75–131, 1993.
- [17] R. E. Van Grieken and A. A. Markowicz. *Handbook of X-ray Spectrometry*, volume 14. Dekker, 1993.
- [18] *Proceedings of the workshop on new directions in soft X-Ray photoabsorption*, April 1984.
- [19] Gupixwin software : <http://pixe.physics.upguelph.ca/gupix/main/>.
- [20] L.H. Keith, W. Crummet, J. Deagan Jr., R.A. Libby, J.K. Taylor, and G. Wentler. Principles of environmental analysis. *Analytical Chemistry*, 55 :2210–2218, 1983.
- [21] P.J. Potts. *A handbook of silicate rock analysis*. Blackie, 1992.
- [22] F.Mathis, O.Vrielynck, K.Laclavetine, G.Chêne, and D.Strivay. Study of the provenance of belgian Merovingian garnets by PIXE at IPNAS cyclotron. *Nucl. Instr. Meth B*, 266 :2348–2352, 2008.
- [23] D. Strivay. Cours de master : Spectrométrie approfondie. 2006-2007.
- [24] Rump software : <http://www.genplot.com/doc/RUMP/TopLevel.htm>.
- [25] M. Mayer. Simnra software : <http://home.rzg.mpg.de/~mam/>.
- [26] A.F. Gurbich. Evaluation of non-rutherford cross sections for IBA : Theory and results. *Nucl. Instr. Meth B*, 261 :401–404, 2007.
- [27] J. L’Ecuyer, J.A. Davies, and N. Matsunami. *Nucl. Instr. Meth.*, 160 :337, 1979.
- [28] W.A. Wenzel and W. Whaling. *Phys. Rev.*, 87 :499–503, 1952.
- [29] H.H. Andersen, F.Besenbacher, P. Loftager, and W. Möller. *Phys. Rev. A*, 21(6) :1891, 1980.
- [30] M. Bozoian, K.M. Hubbard, and M. Nastasi. *Nucl. Instr. Meth B*, 51 :311, 1990.

- [31] G. Chene, S. Bols, T. Dupuis, A. Marchal, F. Mathis, H.-P. Garnir, and D. Strivay. New external beam and particle detection set-up of liege cyclotron, first applications of high energy beams to cultural heritage. *Nucl. Instr. Meth B*, 273 :208 – 212, 2012.
- [32] A.Z. Kiss, E. Koltay, B. Nyako, E. Somorjal, A. Anttila, and J. Raisanen. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 89(1) :123–141, 1985.
- [33] Line Van Wersch. *Céramiques et verres mérovingiens dans la vallée mosane. Apports de l'archéologie et de l'archéométrie à l'histoire économique, sociale et culturelle*. PhD thesis, Université de Liège, 2010.
- [34] H. Calvo del Castillo, G. Chêne, T. Dupuis, N. Deprez, D. Strivay, A. Munoz-Noval, M.A. Millan chagoyen, P. Beneitez, and T. Calderon. Differentiation of polymorphs by ionoluminescence. *Physics Procedia*, 2(2) :373, 2009.
- [35] H. Calvo del Castillo, N. Deprez, T. Dupuis, F. Mathis, A. Deneckere, P. Vandenabeele, T. Calderon, and D. Strivay. Towards the differentiation of non-treated and treated corundum minerals by ion-beam-induced luminescence and other complementary technique. *Anal Bional Chem*, 394 :1043–1058, 2009.
- [36] Publications du centre Européen d'Archéométrie.
- [37] G. Chêne, F. Mathis, T. Dupuis, A. Marchal, M. Philippe, M. Clar, D. Strivay, and H.P. Garnir. Towards calibration and characterization of high-energy beams using charged particle retrodiffusion on a double thin carbon foil system. *Nucl. Instr. Meth B*, 268(11-12) :2015–2018, 2010. 19th International Conference on Ion Beam Analysis.
- [38] G. Weber, J.M. Delbrouck, D. Strivay, F. Kerff, and L. Martinot. Use of a variable incidence angle PIXE arrangement for studying pigment multilayers. *Nucl. Instr. Meth B*, 139 :196–201, 1998.
- [39] G. Weber, D. Strivay, L. Martinot, and H.-P. Garnir. Use of pixe-pixe under variable incident angle for ancient glass corrosion measurements. *Nucl. Instr. Meth B*, 189(1-4) :350–357, 2002.
- [40] Srim software : <http://www.srim.org>.
- [41] Canberra : <http://www.canberra.com>.
- [42] Julie Absil. Etude de centres colorés créés dans les pigments lors d'analyses PIXE. Master's thesis, ULg, 2002.
- [43] Thomas Dupuis. Elaboration d'une ligne d'extraction de faisceaux d'ions pour des analyses PIXE, RBS et PIGE en archéométrie. Master's thesis, ULg, 2007.

- [44] René Delhalle. Montage et caractérisation du système d'extraction des faisceaux à l'air libre pour l'étude des objets du patrimoine culturel. Master's thesis, ULg, 2009.
- [45] E2V : <http://www.e2v.com>.
- [46] Moxtek, inc. 452 west 1260 north, orem, ut 84057.
- [47] T. Calligaro, J.C. Dran, J. Salomon, and Ph Walter. Review of accelerator gadgets for art and archaeology. *Nucl. Instr. Meth B*, 226 :29–37, 2004.
- [48] M. Chiari, A. Migliori, and P.A. Mando. Investigation of beam induced damage to ancient ceramics in external PIXE measurements. *Nucl. Instr. Meth B*, 188 :151–155, 2002.
- [49] Grégoire Chêne. Développement et caractérisation en terme de dispersion en énergie d'une ligne de faisceau analysé en sortie d'un cyclotron CGR MeV type 520. Master's thesis, Paris 5 et ULg, 2006.
- [50] G. Chêne, H.P. Garnir, A. Marchal, F. Mathis, and D. Strivay. Improved energy resolution of a cyclotron beam for RBS measurements. *Nucl. Instr. Meth B*, 266 :2110–2112, 2008.
- [51] Pfeiffer : <http://www.pfeiffer-vacuum.com>.
- [52] T. Dupuis, G. Chene, F. Mathis, A. Marchal, H.-P. Garnir, and D. Strivay. X-ray production cross-sections measurements for high-energy alpha particle beams : New dedicated set-up and first results with aluminum. *Nucl. Instr. Meth B*, 269(24) :2979–2983, 2011.
- [53] F.P. Hocquet, H. Calvo del Castillo, A.C. Xicotencatl, C. Bourgeois, C. Oger, A. Marchal, M. Clar, S. Rakkaa, E. Micha, and D. Strivay. Elemental 2d imaging of paintings with a mobile edxrf system. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2010.
- [54] M. Dobeli, R.M. Ender, V. Liechtenstein, and D. Vetterli. Time-of-flight spectrometry applied to 2 mev he rbs. *Nucl. Instr. Meth B*, 142(3) :417–424, 1998.
- [55] Imagej software v. 1.45 : <http://rsbweb.nih.gov/ij/>.
- [56] C. Neelmeijer, W. Wagner, and H.P. Schramm. Depth resolved ion beam analysis of objects of art. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 118(1-4) :338 – 345, 1996. Ion Beam Analysis.
- [57] The merits of particle induced x-ray emission in revealing painting techniques. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section*



- B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 189(1-4) :293 – 302, 2002.
- [58] Sigmacalc - ibandl : <http://www-nds.iaea.org/sigmacalc/>.
- [59] S. Akhmadaliev, R. Heller, D. Hanf, G. Rugel, and S. Merchel. The new 6mv-ams-facility dreams at dresden. *Nucl. Instr. Meth B*, Accepted Manuscript.
- [60] Manuel de gupix : <http://pixe.physics.uoguelph.ca/gupix/features/>.
- [61] M. Mäder and C. Neelmeijer. Proton beam examination of glass - an analytical contribution for preventive conservation. *Nucl. Instr. Meth B*, (226) :110–118, 2004.
- [62] R. Mateus, A.P. Jesus, and J.P. Ribeiro. A code for quantitative analysis of light elements in thick samples by pige. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 229(2) :302 – 308, 2005.
- [63] T. Calligaro, J.C. Dran, B. Moignard, L. Pichon, J. Salomon, and Ph Walter. Ion beam analysis with external beams : Recent set-up improvements. *Nucl. Instr. Meth B*, 188 :135–140, 2002.
- [64] L. Pichon, L. Beck, Ph. Walter, B. Moignard, and T. Guillou. A new mapping acquisition and processing system for simultaneous pixe-rbs analysis with external beam. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(11-12) :2028 – 2033, 2010.
- [65] François Mathis. *Croissance et propriétés des couches d’oxydation et des patines à la surface d’alliages cuivreux d’intérêt archéologique ou artistique*. PhD thesis, Paris 11, 2005.
- [66] L. Beck. Improvement in detection limits by using helium ion as particle induced x-ray emission. *X-ray Spectrometry*, 34(4) :393–399, 2005.
- [67] T.Dupuis, G.Chêne, F.Mathis, A.Marchal, M.Philippe, H.P. Garnir, and D.Strivay. Preliminary experiments : High-energy alpha-PIXE in archaeometry. *Nucl. Instr. Meth B*, 2010.
- [68] P. Trouslard and J. Tirira. Pyrrole software v 3.93, cea (instn).
- [69] J. Garcia Lopez, I. Ortega-Feliu, Y. Morilla, and A. Ferrero. The new Cyclone 18/9 beam transport line at the CNA (Sevilla) for high energy PIXE applications. *Nucl. Instr. Meth B*, 266 :1583–1586, 2008.
- [70] A. Denker and J. Opitz-Coutureau. Paintings- high-energy protons detect pigments and paint-layer. *Nucl. Instr. Meth B*, 213 :677–682, 2004.

- [71] David Strivay. *Nouvelles applications des techniques d'analyse par faisceau d'ions*. PhD thesis, ULg, 2001.
- [72] E. Merzbacher and H. Lewis. *Hand. Phys.*, 34 :166, 1958.
- [73] W. Brandt and G. Lapicki. *Phys. Rev. A*, 10 :474, 1974.
- [74] W. Brandt and G. Lapicki. *Phys. Rev. A*, 23 :1717, 1981.
- [75] G. Lapicki. *J.Phys B : At.Mol.Phys*, 20 :L633–L636, 1987.
- [76] Asad Shariff, Karin Bülow, Mikael Elfman, Per Kristiansson, Klas Malmqvist, and Jan Pallon. Calibration of a new chamber using GUPIX software package for PIXE analysis. *Nucl. Instr. Meth B*, 189 :131–137, 2002.
- [77] M.Mesradi, A.Elanique, A.Nourreddine, A.Pape, D.Raiser, and A.Sellam. Experimental characterization and Monte Carlo simulation of Si(Li) detector efficiency by radioactive sources and PIXE. *Applied radiation and isotopes*, 66 :780–785, 2008.
- [78] Zhiqiang Liu and Sam J. Cipolla. Isics : A program for calculating K-,L- and M-shell cross sections from ECPSSR theory using a personal computer. *Computer Physics Communications*, (97) :315–330, 1996.
- [79] Isics : <http://cpc.cs.qub.ac.uk/>.
- [80] Ana Taborda, P.C. Chaves, and M.A. Reis. Simulation of L X-ray yields induced by He ions. *Nucl. Instr. Meth B*, 268 :1802–1805, 2010.
- [81] C.F. Moore, M. Senglaub, B. Johnson, and P. Richard. *Phys. Rev. A*, 40 :107, 1972.
- [82] R. H. McKnight, S. T. Thornton, and R. R. Karlowicz. K-shell ionization of Al, V, Fe, Cu, Y, Mo, Ag, and Sn by 1-5 MeV alpha-particle bombardment. *Phys. Rev. A*, 9(1) :267–272, 1974.
- [83] A.R. Knudson, P.G. Burkhalter, and D.J. Nagel. *Journal of Physics B Atomic*, 5(1675), 1972.
- [84] D.K. Olsen, C.F. Moore, and R.L. Kauffman. *Phys. Rev. A*, 44 :109, 1973.
- [85] J.S. Hansen. *Phys. Rev. A*, 8 :822, 1973.
- [86] Guy Terwagne and G. Deconninck. Dependence of X-ray emission following  $\text{Pb}(\alpha, \text{xn})\text{Po}$  reactions on the neutron number of the residual nucleus. *Phys. Rev. A*, 27(2) :833–840, 1983.
- [87] J.L. Campbell, J.A. Maxwell, S.M. Andrushenko, S.M. Taylor, B.N. Jones, and W. Brown-Bury. A gupix-based approach to interpreting the pixe-plus-xrf spectra from the mars exploration rovers : I. homogeneous standards. *Nucl. Instr. Meth B*, 269(1) :57 – 68, 2011.

- 
- [88] P. Vandenabeele, R. Garcia-Moreno, F.Mathis, K. Leterme, E. Van Elslande, F.P. Hocquet, S. Rakkaa, D. Laboury, L. Moens, D. Strivay, and M. Hartwig. Multi-disciplinary investigation of the tomb of menna (tt69), theban necropolis, egypt. *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 73(3) :546–552, 2009.
- [89] H. Paul and J.Sacher. Fitted empirical reference cross sections for K-Shell ionization by protons. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 42(1) :105, 1989.
- [90] George Basbas, Werner Brandt, and Roman Laubert. Universal cross sections for K-Shell ionization by heavy charged particles. ii. Intermediate particle velocities. *Phys. Rev. A*, 17(5) :1655, 1978.



# Table des figures

1.1	Schéma d'ionisation. . . . .	18
1.2	Schéma de production de rayon X. . . . .	19
1.3	Diagramme de niveaux. . . . .	19
1.4	Schéma d'émission d'électron Auger. . . . .	21
1.5	Rendements de fluorescence et de Coster-Kronig [15][16]. . . . .	26
1.6	Perte d'énergie $\frac{dE}{dx}$ en fonction de l'énergie incidente. . . . .	27
1.7	Courbe typique de l'efficacité d'un détecteur X de type Si(Li) [1]. . . . .	30
1.8	Exemple de spectre PIXE d'un échantillon épais cuivreux. . . . .	32
1.9	Bremsstrahlung. . . . .	34
1.10	Graphique du rapport des concentrations de MgO et de CaO pour un corpus de grenats mérovingiens . . . . .	37
1.11	Photographies de grenats mérovingiens sertis. . . . .	37
2.1	Schéma de principe de la méthode RBS. . . . .	40
2.2	Schéma de principe de la méthode RBS. . . . .	40
2.3	Perte d'énergie dans une couche de surface [23]. . . . .	41
2.4	Spectres RBS associés aux cas simples [23]. . . . .	43
2.5	Bague dorée datée du troisième siècle. . . . .	45
2.6	Spectre RBS de la bague - 3,12 MeV proton. . . . .	46
3.1	Schéma de principe de la méthode PIGE. . . . .	48
3.2	Barrière coulombienne en fonction du numéro atomique de l'atome cible. . . . .	49
3.3	Exemple de spectre PIGE sur une cible de sodium. . . . .	52
3.4	Panse en verre de l'époque mérovingienne. . . . .	53
3.5	Spectre PIXE de la panse. . . . .	54
3.6	Spectre PIGE de la panse. . . . .	54

3.7	Rapport des concentrations PIXE et PIGE en oxyde de sodium pour le corpus. . . . .	55
4.1	Principe de l' IBIL. . . . .	58
4.2	Spectre IBIL d'un saphir provenant du Vietnam. . . . .	60
4.3	Caractérisation des traitements appliqués aux rubis de Mong Hsu. . . . .	60
1.1	Schéma des installations aux premiers jours. . . . .	68
1.2	Schéma des installations actuelles. . . . .	69
1.3	Schéma des installations actuelles. . . . .	70
1.4	La zone de travail de la ligne de transport directe en 2002 [39].	73
1.5	Le nez d'extraction de la zone de travail de la ligne de transport directe en 2002. . . . .	74
1.6	Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 2,5 microns de nickel et de 5 cm d'air. . . . .	74
1.7	Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 2,5 microns de nickel et de 5 cm d'hélium. . . . .	75
1.8	Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 100 nm de nitrure de silicium et de 5 cm d'air. . . . .	75
1.9	Simulation du passage de 10000 protons d'énergie incidente de 3,12 MeV au travers de 100 nm de nitrure de silicium et de 5 cm d'hélium. . . . .	75
1.10	Plan du nez d'extraction à l'échelle millimétrique. . . . .	78
1.11	Principe de la mesure de dose incluse dans le nez d'extraction.	79
1.12	Schéma de la géométrie du dispositif actuel. . . . .	81
1.13	Quadrupôle magnétique. Les flèches rouges représentent les lignes de champ, les flèches simples, le sens des composantes (x,y) du champ magnétique et les flèches doubles, les forces appliquées sur des particules chargées positivement. . . . .	84
1.14	Schémas et photographie du déflecteur. . . . .	88
1.15	Photographies et plan de la chambre sous vide dédiée aux mesures de section efficace. . . . .	89
1.16	Photographie des passages sous vides de la chambre. . . . .	90
1.17	Schéma de la table de translation. . . . .	91
1.18	Plan du nez d'extraction. . . . .	94
1.19	Plan du système de détection RBS extrait. . . . .	94

1.20	Plan et photographie, pris lors d'une analyse de dorure dans le cadre du mémoire de S.Bols, de la géométrie du nez d'extraction et du système RBS extrait. . . . .	95
1.21	Schéma d'une chaîne d'acquisition classique. . . . .	97
1.22	Nouveau MultiChannel Analyzer "home made". . . . .	97
1.23	Interface du logiciel d'acquisition. . . . .	98
2.1	Trajectoire des protons dans le déflecteur. . . . .	102
2.2	Schémas et photographie du déflecteur de la voie 5. . . . .	103
2.3	Schémas et photographie du déflecteur de la voie 8. . . . .	105
2.4	Déviations des protons par le déflecteur de 0,57 T et 7 cm de long à une distance $d = 0,6$ cm (en rouge) et $d = 1,2$ cm (en vert). . . . .	112
2.5	Déviations des protons par le déflecteur de 0,85 T et 4 cm de long à une distance $d = 1$ cm (en rouge) et $d = 3$ cm (en vert). . . . .	113
2.6	Déviations des particules $\alpha$ par le déflecteur de 0,85 T et 4 cm de long à une distance $d = 0,8$ cm. . . . .	114
1.1	Schéma des facilités. . . . .	122
1.2	L'accélérateur Van de Graaff 2 MV. . . . .	123
1.3	L'accélérateur Van de Graaff 6 MV. . . . .	125
1.4	photographie de l'extraction. . . . .	127
1.5	Schéma de l'extraction. . . . .	127
1.6	Simulation de la géométrie d'extraction de Liège. . . . .	128
1.7	Simulation de la géométrie d'extraction intermédiaire. . . . .	129
1.8	Simulation de la géométrie d'extraction de Dresden. . . . .	129
1.9	Photographies du nez d'extraction. . . . .	131
1.10	Photographies des moules des angles solides des détecteurs. . . . .	132
1.11	Photographie de la géométrie d'analyse de la ligne - Kanal 5. . . . .	132
1.12	Photographie de la géométrie d'analyse de la ligne - Kanal 5. . . . .	133
2.1	Echantillons 1. . . . .	137
2.2	Spectre et simulation de l'échantillon Ti/C. . . . .	138
2.3	Echantillons 2. . . . .	140
2.4	Spectre et simulation de l'échantillon Ni/Si. . . . .	140
3.1	Calibration en énergie du nouvel accélérateur. . . . .	143
3.2	Courbe d'efficacité d'un détecteur X Si(Li) [46]. . . . .	147
3.3	Schéma du cristal du détecteur PIXE 2. . . . .	164
3.4	Schéma de la stratégie PIGE. . . . .	169
3.5	Corrélation linéaire du silicium en 2008. . . . .	171

3.6	Corrélation linéaire du sodium en 2008. . . . .	172
3.7	Corrélation linéaire de l'aluminium en 2008. . . . .	172
3.8	Corrélation linéaire du magnésium en 2008. . . . .	173
3.9	Corrélation linéaire du bore en 2008. . . . .	173
3.10	Corrélation linéaire du silicium en 2011. . . . .	178
3.11	Corrélation linéaire du sodium en 2011. . . . .	178
3.12	Corrélation linéaire de l'aluminium en 2011. . . . .	179
3.13	Corrélation linéaire du magnésium en 2011. . . . .	179
3.14	Corrélation linéaire du bore en 2011. . . . .	180
4.1	Fit linéaire de la calibration en énergie du RBS extrait. . . . .	185
4.2	Epaisseurs calculées par les quatre méthodes IBA. . . . .	199
4.3	Comparaison des épaisseurs des méthodes par rapport à l'He-RBS. . . . .	200
1.1	AGLAE. . . . .	210
1.2	Schéma de principe d'un pelletron. . . . .	211
1.3	Plan 3D de la chambre sous vide [65]. . . . .	212
1.4	Photographie de la chambre sous vide. . . . .	213
1.5	Géométrie de détection. . . . .	214
1.6	Géométrie du 14.05.08. . . . .	215
1.7	Géométrie du 12.06.08. . . . .	216
1.8	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons. . . . .	229
1.9	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules $\alpha$ . . . . .	229
1.10	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les $^3He$ . . . . .	230
1.11	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons. . . . .	230
1.12	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules $\alpha$ . . . . .	231
1.13	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les $^3He$ . . . . .	231
1.14	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons. . . . .	242
1.15	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules $\alpha$ . . . . .	242
1.16	Graphique de l'intensité par rapport à l'énergie des rayons X pour les $^3He$ . . . . .	243



1.17	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les protons. . . . .	243
1.18	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les particules $\alpha$ . . . . .	244
1.19	Graphique de l'intensité divisée par le bruit par rapport à l'énergie des rayons X pour les $^3He$ . . . . .	244
2.1	Comparaison des intensités normalisées pour les cibles minces avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	256
2.2	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	257
2.3	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 12 MeV et de protons de 3 MeV. . . . .	258
2.4	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles minces avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 8, 9 et 10 MeV. . . . .	260
2.5	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de protons de 3, 4 et 5 MeV. . . . .	262
2.6	Comparaison des intensités normalisées pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules $\alpha$ allant de 6 à 12 MeV. . . . .	264
2.7	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules $\alpha$ allant de 6 à 12 MeV. . . . .	265
2.8	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour les cibles épaisses élémentaires avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 12 MeV et de protons de 3 MeV. . . . .	266
2.9	Spectres de la cible mince de référence de bronze pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	271
2.10	Spectres de la cible mince de référence de roche pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	272
2.11	Spectres de la cible mince de référence de bronze pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	273
2.12	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de bronze avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	274

2.13	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de roche avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	275
2.14	Comparaison des rapports des intensités sur l'aire totale pour la cible épaisse de référence de verre avec les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	276
2.1	Chambre sous vide dédiée aux mesures de sections efficaces. .	297
2.2	Graphique du facteur de correction H calculé de manière à obtenir la concentration réelle dans "GupixWin" en fonction de l'énergie des rayons X issus des raies K, L, et M. . . . .	300
2.3	Spectre RBS de la cible Au/Cr/Si à 3,12 MeV proton et de la source d' $^{241}\text{Am}$ . . . . .	302
2.4	Concentrations calculées (et moyenne) pour la cible mince de Bi, corrigées du facteur H, pour le faisceau de protons de 3,12 MeV. . . . .	305
2.5	Corrélation linéaire entre le rapport des sections efficaces mesurées et théoriques de l'Al pour les faisceaux d' $\alpha$ de haute énergie. . . . .	306
2.6	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour l'Al. . . . .	311
2.7	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour le Si. . . . .	314
2.8	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe. . . . .	320
2.9	Spectres XRF des cibles minces de Cu - Micromatter et CSL. .	324
2.10	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu. . . . .	325
2.11	Spectres XRF des cibles minces de Au - Micromatter et CSL. .	328
2.12	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L2 de l'Au. . . . .	329
2.13	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L3 de l'Au. . . . .	330
2.14	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L1 du Pb. . . . .	335
2.15	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L2 du Pb. . . . .	336
2.16	Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour la raie L3 du Pb. . . . .	337

# Liste des tableaux

1	Méthodes d'analyses par faisceaux d'ions courantes au "Centre Européen d'Archéométrie" . . . . .	14
1.1	Notations (IUPAC et Siegbahn) des principales raies X et leurs intensités relatives par rapport à la raie majeure pour chaque sous-couche. . . . .	20
3.1	Réactions nucléaires envisagées en PIGE. . . . .	51
3.2	Table des oxydes de l'échantillon. . . . .	56
1.1	Energies pouvant être produites par le cyclotron. . . . .	68
2.1	Déviations calculées pour le déflecteur circulaire de 7 cm de long.	106
2.2	Déviations calculées pour le déflecteur circulaire de 4 cm de long.	106
2.3	Recul nécessaire pour éviter la détérioration du cristal. . . . .	107
2.4	Déviations calculées pour le déflecteur circulaire de 4 cm de long.	109
2.5	Recul nécessaire pour éviter la détérioration du cristal. . . . .	109
1.1	Caractéristiques du Van de Graaff de 2 MV. . . . .	122
1.2	Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 3 MV. . . . .	124
1.3	Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 5 MV. . . . .	124
1.4	Caractéristiques de l'accélérateur Van de Graaff 6 MV. . . . .	125
1.5	Géométrie d'extraction à Liège, à Dresden et intermédiaire. . . . .	128
1.6	Paramètres expérimentaux des détecteurs. . . . .	134
2.1	Cibles minces élémentaires sur un substrat de carbone ou de silicium. . . . .	137
2.2	Cibles minces élémentaires de 50 ou 100 nm sur un substrat de silicium. . . . .	139

3.1	Paramètres théoriques de l'accélérateur tandem de 6 MV pour un faisceau de protons de 4 MeV. Les valeurs entre parenthèses sont les valeurs réelles. . . . .	144
3.2	Echantillons épais du 20.10.11 sans le diaphragme en Ta. . . .	149
3.3	Echantillons épais du 20.10.11 avec le diaphragme en Ta. . . .	150
3.4	Calcul du facteur $H$ pour la PIXE 1 - 20.10.11. . . . .	151
3.5	Epaisseur du filtre de Mylar. . . . .	152
3.6	Epaisseur de la couche morte du cristal . . . . .	153
3.7	Vérification du filtre de Mylar . . . . .	153
3.8	Concentrations avec les nouveaux paramètres. . . . .	154
3.9	Récapitulatif des paramètres. . . . .	155
3.10	Atténuation des rayons X dans le silicium. . . . .	155
3.11	Echantillons épais du 04.11.11 avec et sans le diaphragme en Ta. . . . .	158
3.12	Facteur de correction $H$ pour la configuration avec le diaphragme en Ta. . . . .	159
3.13	Epaisseur du filtre d'acrylique. . . . .	160
3.14	Vérification des paramètres pour la configuration avec le diaphragme en Ta. . . . .	160
3.15	Facteur de correction $H$ pour la configuration sans le diaphragme en Ta. . . . .	161
3.16	Rapport des aires corrigées. . . . .	162
3.17	Récapitulatif des paramètres. . . . .	163
3.18	Echantillons de référence. . . . .	167
3.19	Traitement du 23.10.08. . . . .	170
3.20	Corrélations linéaires avec l'ancien accélérateur 5 MV. . . . .	171
3.21	Echantillons du 24.10.11. . . . .	174
3.22	Traitement du 24.10.11. . . . .	175
3.23	Corrélations linéaires avec le nouvel accélérateur 6 MV. . . . .	177
3.24	Comparaison des calibrations de 2008 et 2011. . . . .	181
4.1	Données du fit de la calibration en énergie du RBS extrait. . . .	186
4.2	Expériences 15 septembre 2005 . . . . .	186
4.3	Cible mince élémentaire sur substrat de carbone du 25 juillet 2005. . . . .	187
4.4	Epaisseurs calculées en RBS extrait. . . . .	187
4.5	Récapitulatif des épaisseurs calculées. . . . .	187
4.6	Expériences du 2 septembre 2011. . . . .	188
4.7	Comparaison du RBS extrait. . . . .	190
4.8	Echantillons du 04.11.11. . . . .	192

4.9	Récapitulatif des résultats des épaisseurs des cibles minces sur substrat épais. . . . .	195
4.10	Comparaison en pourcent des épaisseurs des méthodes par rapport à l'He-RBS. . . . .	196
4.11	Comparaison des épaisseurs en pourcent de PIXE 1 et PIXE 2.	197
4.12	Echantillons du 14.11.11. . . . .	201
4.13	Résultats des épaisseurs des quatre méthodes. . . . .	202
4.14	Comparaison des résultats des épaisseurs des quatre méthodes.	202
1.1	Fenêtre d'entrée "Moxtek". . . . .	214
1.2	Faisceaux réalisés lors des expériences parisiennes. . . . .	216
1.3	Liste des cibles minces analysées le 14 mai 2008. . . . .	217
1.4	Liste des cibles minces analysées le 12 juin 2008. . . . .	217
1.5	Tableaux récapitulatifs des résultats du dépouillement des spectres X des cibles minces. . . . .	228
1.6	Estimation de l'épaisseur de la couche d'oxyde de silicium. . .	236
1.7	Parcours maximale des particules incidentes dans la matière. .	236
1.8	Tableaux récapitulatifs des résultats des cibles épaisses. . . .	241
2.1	Cibles minces "Micromatter". . . . .	251
2.2	Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de protons de 3 MeV. . . . .	252
2.3	Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules $\alpha$ de 6 MeV. . . . .	253
2.4	Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules $\alpha$ de 9 MeV. . . . .	254
2.5	Résultats de l'analyse des cibles minces avec le faisceau de particules $\alpha$ de 12 MeV. . . . .	255
2.6	Résultats des cibles minces irradiées avec des faisceaux de particules $\alpha$ de 8, 9 et 10 MeV. . . . .	259
2.7	Parcours dans la matière des différentes conjectures énergie/particule pour les cibles épaisses irradiées. . . . .	261
2.8	Résultats des analyses des cibles épaisses élémentaires pour les faisceaux de protons allant de 3 à 5 MeV. *, **, *** indiquent trois mesures de dose différentes. . . . .	261
2.9	Résultats des analyses des cibles épaisses élémentaires pour les faisceaux de particules $\alpha$ allant de 6 à 12 MeV. . . . .	263
2.10	Concentrations des oxydes des cibles épaisses de référence de roche et de verre. . . . .	267

2.11 Concentrations élémentaires de la cible épaisse de référence en bronze. . . . .	267
2.12 Récapitulatifs des résultats de la cible de bronze pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	268
2.13 Récapitulatifs des résultats de la cible de roche pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	269
2.14 Récapitulatifs des résultats de la cible de verre pour les faisceaux de particules $\alpha$ de 6, 9 et 12 MeV. . . . .	270
2.1 Cibles minces "Micromatter". . . . .	299
2.2 Calibration de l'énergie des faisceaux de particules $\alpha$ par rapport à la fréquence de la haute tension et du canal sur le spectre RBS de l'or à 170°. . . . .	303
2.3 Récapitulatif des résultats de la vérification de la reproductibilité de la dose sur la cible mince de Bi. . . . .	304
2.4 Comparaison des sections efficaces mesurées et théoriques pour l'aluminium avec des faisceaux $\alpha$ de haute énergie. . . . .	306
2.5 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour l'Al. . . . .	310
2.6 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l'Al. . . . .	312
2.7 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X pour le Si. . . . .	313
2.8 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Si. . . . .	318
2.9 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe. . . . .	319
2.10 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Fe. . . . .	322
2.11 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu. . . . .	324
2.12 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Cu. . . . .	327
2.13 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l'Au. . . . .	331
2.14 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour l'Au. . . . .	334
2.15 Comparaison des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Pb. . . . .	338

---

2.16 Récapitulatif des sections efficaces de production de rayons X mesurées pour le Pb. . . . .	342
---	-----